Das Temperaturverhalten der Hyperfeinfelder von Nickel, Kupfer und Zink in Nickel in der Nähe der Curietemperatur

I n a u g u r a l d i s s e r t a t i o n

zur Erlangung der Doktorwürde

der

Freien Universität Berlin

Fachbereich Physik

vorgelegt von

Wolf-Dietrich Zeitz

aus Brandenburg

- Juli 1974 -

Das Temperaturverhalten der Hyperfeinfelder von Nickel, Kupfer und Zink in Nickel in der Nähe der Curietemperatur

I n a u g u r a l d i s s e r t a t i o n

zur Erlangung der Doktorwürde

der

Freien Universität Berlin

Fachbereich Physik

vorgelegt von

Wolf-Dietrich Zeitz

aus Brandenburg

- Juli 1974 -

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Gutachter: Prof. Dr. K. H. Lindenberger

2. Gutachter: Prof. Dr. S. Wilking

Tag der mündlichen Prüfung: 12. 9. 1974

Tag der Promotion:

Inhaltsverzeichnis

		Seite
	Zusammenfassung	1
I	Einleitung	3
II	Kritische Phänomene	6
	1. Definition der kritischen Exponenten α, β, γ und δ	6
	2. Beziehungen zwischen den Exponenten und die magnetische Zustandsgleichung	8
	3. Die Parameter des verallgemeinerten Modells des Ferromagnetismus	10
	4. Renormierungsmodelle	15
III	Methoden zur experimentellen Bestimmung des kritischen Exponenten β	20
	1. Magnetisierungsmessungen	20
	2. Neutronenstreuung	21
	3. Hyperfeinfeldmessungen	22
	3.1 Magnetische Kernresonanz (NMR) und ferromagnetische Resonanz	22
	3.2 Mößbauereffekt	25
	3.3 Gestörte Winkelkorrelation und gestörte Winkelverteilung	26
IV	Meßprinzip (Formale Beschreibung der gestörten Winkelkorrelation)	28
	1. Allgemeine Form der zeitabhängigen Winkelkorrelation	28
	2. Spezielle Winkelkorrelationsfunktionen	29
	2.1 Störungsfaktor für statische und axialsymmetrische Felder	29
	2.2 Störungsfaktor für die magnetische Wechselwirkung	30
	2.3 Störungsfaktor für statische kombinierte Wechselwirkung	31
	2.4 Störungsfaktor für fluktuierende Felder	32

V Bedingungen für die Messungen mit den Sondenkernen ^{63}Ni, ^{66}Cu und ^{67}Zn 34
1. Einfluß der kernphysikalischen Eigenschaften der Sondenkerne auf die Meßgenauigkeit 34
2. Bedingungen für den Beschleunigerstrahl 38
3. Die Sondenkerne ^{63}Ni, ^{66}Cu und ^{67}Zn 38
3.1 Der $5/2^-$-Zustand im ^{63}Ni 38
3.2 Der 6^--Zustand im ^{66}Cu 39
3.3 Der $9/2^+$-Zustand im ^{67}Zn 41

VI Versuchsaufbau 43
1. Teilchenstrahl 43
2. Target 44
3. Targetanordnung und Heizung 44
4. Temperaturregelung 46
5. Geometrischer Aufbau, Detektoren und Elektronik 48

VII Durchführung der Messung und Ergebnisse 50
1. Kernreaktion, Eindringtiefe und Rückstoß 50
2. Gitterplatz und Fehlstellen 51
3. Auswertungen 55
3.2 Bestimmung der Hyperfeinfelder 55
3.3 Bestimmung der Targettemperatur 63
3.4 Bestimmung der kritischen Exponenten 63
4. Meßergebnisse 71

VIII Diskussion der gemessenen Werte 79
1. Übersicht über die bisherigen Ergebnisse für die kritischen Exponenten 79
2. Zwei Werte für den kritischen Exponenten β? 87
3. Voraussagen der Hyperfeinfeldtheorien 88
3.1 Ursprung der Hyperfeinfelder 88
3.2 Temperaturabhängigkeit der Hyperfeinfelder 90
4. Fremdatome im ferromagnetischen Gitter 92
4.1 Modellvorstellungen: Fremdatompotentiale und Momentdesorientierung 92
4.2 Einfluß auf den kritischen Bereich 95

5. Deutung des kritischen Exponenten β in Modellvorstellungen des Phasenübergangs 97
6. Schlußbemerkungen: Kritik des Experimentes und Vorschlag weiterer Experimente 101

Literaturverzeichnis 107

Zusammenfassung

Es wurden Hyperfeinfelduntersuchungen zur Bestimmung des kritischen Exponenten β in Nickelmetall sowohl am reinen System ^{63}NiNi als auch an zwei Fremdatom-Wirtsgittersystemen ^{66}CuNi und ^{67}ZnNi durchgeführt. Die experimentelle Methode war die zeitlich-differentielle Beobachtung der gestörten Winkelverteilung von γ-Quanten nach einer Kernreaktion. Die isomeren Kernzustände - ^{63}Ni: $5/2^-$ bei 87.2 keV, τ = 2.49 μs, g = 0.301; ^{66}Cu: 6^- bei 1154.1 keV, τ = 860 ns, g = 0.1733; ^{67}Zn: $9/2^+$ bei 605 keV, τ = 480 ns, g = 0.243 - wurden mit Hilfe von (d,p)-, (^{3}He,p)- und (α,n)-Kernreaktionen direkt im isotopenangereicherten ^{62}Ni bzw. ^{64}Ni angeregt.

Eine neu entwickelte schnelle Elektronenstrahlheizung sorgte für eine ausreichende Temperaturstabilität im Bereich bis etwa 1° unterhalb des Curiepunktes.

Als Ursache für die Dämpfungen, die in den Spinrotationsspektren beobachtet wurden, werden fluktuierende störstelleninduzierte (magnetische) Felder vermutet, die durch den Störungsfaktor

$$G_{kk}^{qq}(t) = \exp(-i\ t\ q\ \omega_L - \lambda_{kq}\ t)$$

beschrieben werden können. Weder Temperaturverteilungen noch statisch kombinierte Wechselwirkungen können die Dämpfungen erklären.

Die Meßergebnisse für β sind:

^{63}NiNi:	β = 0.320(20)	$2.3\cdot10^{-3} \leq \lvert\varepsilon\rvert \leq 4.2\cdot10^{-2}$
^{66}CuNi:	β = 0.425(50)	$6.5\cdot10^{-3} \leq \lvert\varepsilon\rvert \leq 1.0\cdot10^{-1}$
^{67}ZnNi:	β = 0.425(25)	$2.8\cdot10^{-3} \leq \lvert\varepsilon\rvert \leq 4.6\cdot10^{-2}$

Diese Ergebnisse werfen starke Zweifel an der bisher für den kritischen Bereich angenommenen Proportionalität zwischen dem Temperaturverhalten der Hyperfeinfelder und

dem der spontanen Magnetisierung auf. Es zeigt sich, daß experimentell bestimmte Exponenten nicht von dem zur Messung benutzten Sondenkern unabhängig sind.

Eine umfassende Erklärung des bisher gemessenen kritischen Exponenten kann nicht gegeben werden. Erklärungsversuche, die sich sowohl auf Veränderungen des Gitters in unmittelbarer Nähe von Fremdatomen als auch auf "lokale" Spinblocks, deren Anzahl von internen Freiheitsgraden gegenüber dem normalen Gitter erhöht ist, beziehen, werden dargestellt.

I Einleitung

In dieser Arbeit wird über die Bestimmung des kritischen Exponenten β in Nickel durch Hyperfeinfelder an Nickel-, Kupfer- und Zinkkernen berichtet. Der kritische Exponent β beschreibt das Verhalten der spontanen Magnetisierung $M_S(T)$ kurz unterhalb der Curietemperatur T_c gemäß der Gleichung

$$M_S(T)/M_S(0) = B\ (1 - T/T_c)^{\beta},\ H_{ext} = 0 \quad . \qquad I,1$$

B ist eine Proportionalitätskonstante, $M_S(0)$ die Magnetisierung bei 0 K, H_{ext} ein von außen einwirkendes Magnetfeld.

Diese Gleichung gibt die Meßvorschrift für β an: Es muß die Magnetisierung in Abhängigkeit von der Temperatur ohne extern angelegtes Magnetfeld gemessen werden. Bei Magnetisierungsmessungen kann $H_{ext} = 0$ nicht erfüllt werden; β erhält man bei solchen Messungen "indirekt" durch eine Extrapolation auf das Nullfeld oder durch Anpassen mit Hilfe einer magnetischen Zustandsgleichung. Die Werte, die aus solchen Messungen gewonnen wurden, liegen zwischen 0.41 (KouR67) und 0.34 (AndA71).

Etwas andere Verhältnisse liegen bei Hyperfeinfeldmessungen (NMR, Mößbaereffekt, γγ-Winkelkorrelation) vor: Man kommt ohne externes Magnetfeld aus. Hyperfeinfeldmessungen lassen Rückschlüsse auf die spontane Magnetisierung auf Grund der Hyperfeinwechselwirkung des Atomkernes mit seiner eigenen Elektronenhülle zu. Diese Meßmethoden bieten keine prinzipiellen sondern nur experimentelle Schwierigkeiten: Während keine NMR-Messungen zur Bestimmung von β in Nickel bekannt sind, sind mit Hilfe des Mößbaereffektes und der γγ-Winkelkorrelation eine Reihe von Werten für β gewonnen worden. Es wurde in zwei Arbeiten übereinstimmend β = 0.38 für ^{57}Fe<u>Ni</u> gefunden (GumS71, BenR72); der kritische Exponent für ^{100}Rh<u>Ni</u> ist β = 0.385(5) (RenH70), während er für ^{181}Ta<u>Ni</u>

$\beta = 0.417(10)$ (OddB73) ist. Vorausgesetzt wurde bei diesen Messungen, daß die Temperaturabhängigkeit des Hyperfeinfeldes am Sondenkern wenigstens im kritischen Bereich der spontanen Magnetisierung des Gitters folgt, also:

$$H_{hf}(T)_{Sondenkern} \sim M_S(T) \quad , T \lesssim T_c. \qquad I,2$$

Diese Annahme wurde bisher weitgehend als erfüllt angesehen. Erst in letzter Zeit sind im Falle ^{181}TaNi (OddB73) Zweifel daran laut geworden.

Da es in den Nickelisotopen keine für die Messung im kritischen Bereich geeigneten Kernniveaus gibt, die Mößbauer- oder Winkelkorrelationsmessungen zugänglich wären, wurden alle bisherigen Hyperfeinfeldmessungen mit Fremdatomen durchgeführt. Bei den hier vorgestellten Messungen wurde zum ersten Mal ein Nickel-Gitteratom als Sonde benutzt, und zwar der erste angeregte Zustand des ^{63}Ni, der nur über eine Kernreaktion zu erreichen ist. Mit Kernreaktionen kann man außerdem Fremdatome im Nickel selbst erzeugen, wenn man ^{64}Ni mit ^{3}He-Kernen oder α-Teilchen beschießt. Somit kann man mit der hier verwendeten Meßmethode das kritische Verhalten des Nickel-Hyperfeinfeldes mit dem von Fremdatom-Hyperfeinfeldern vergleichen.

In Kauf nehmen muß man allerdings einige Nachteile der Messungen am Beschleuniger: Durch den Teilchenstrahl erzeugt man Temperaturinstabilitäten und Strahlungsschäden im Target. Das erste Problem machte die Konstruktion einer schnellen Elektronenstrahlheizung nötig, während der Einfluß der Strahlungsschäden auf das Verhalten des Nickelgitters nicht vermieden werden kann und nicht geklärt ist.

Die experimentelle Situation stellt sich heute also folgendermaßen dar: Neue Meßverfahren erlauben die Bestimmung des kritischen Exponenten β, ohne daß externe Magnetfelder angelegt werden müssen, jedoch bringen sie neue Probleme mit sich. Zur Klärung der damit zusammenhängenden Fragen müssen die Meßtechniken erweitert und verfeinert werden und Experimente durchgeführt werden, die Diskrepanzen klären und Ab-

weichungen unter den kritischen Exponenten als signifikant oder nicht signifikant, als systematisch oder zufällig einordnen lassen. Unsere Messungen sollten zur Klärung einer dieser Fragen beitragen: Kann der kritische Exponent β im Nickel von der verwendeten Hyperfeinsonde abhängen?

Parallel zur Erweiterung und Verbesserung der Meßtechniken laufen die Entwicklungen der Theorien, die auf dem Wege über die "Scaling"-Hypothese (Sta71 und Literatur darin) und die Universalitätshypothese (Gri70) bis zu den Renormierungsmodellen (StaH71, Wil71a und folgende Veröffentlichungen) einiges zum besseren Verständnis der kritischen Phänomene beigetragen haben. Auch hier ist die Entwicklung nicht abgeschlossen. Es bleibt abzuwarten, wie weit die Flut von Veröffentlichungen, die seit der Einführung des Renormierungsmodells von Wilson auf uns zukommt , neue Gesichtspunkte bei der Behandlung kritischer Phänomene bringt.

Diese Arbeit gliedert sich in mehrere Teile:
Im Kapitel II werden die kritischen Exponenten eingeführt und einige Theorien vorgestellt. Im Kapitel III wird über die Vor- und Nachteile der einzelnen experimentellen Methoden zur Bestimmung von β referiert, Kapitel IV bringt die formale Beschreibung der hier verwendeten experimentellen Methode. Im Kapitel V werden Kriterien für die Anwendbarkeit von Sondenkernen auf die Messung von β entwickelt und die hier benutzten Sondenkerne vorgestellt. Der Versuchsaufbau und der Elektronenstrahlofen werden im Kapitel VI beschrieben. Auf die Auswertung der Meßdaten wird im Kapitel VII eingegangen. Dort werden auch die Meßergebnisse angegeben. Die Diskussion der Meßdaten folgt schließlich im Kapitel VIII.

II Kritische Phänomene

II.1 Definition der kritischen Exponenten α, β, γ und δ

Jeder thermodynamische Zustand eines Magneten wird durch einen Punkt in einem dreidimensionalen Raum repräsentiert, der durch die Zustandsgrößen Temperatur T, Magnetfeld H und Magnetisierung M aufgespannt wird. Diese Größen sind in einer Zustandsgleichung der Form

$$M = f(T,H) \qquad \text{II,1}$$

miteinander verknüpft. Die spontane Magnetisierung, der Ordnungsparameter des magnetischen Systems, wird als Grenzwert

$$M_S = \lim_{\substack{H\to O \\ T<T_c}} M(T,H) \qquad \text{II,2}$$

definiert. Als weitere Größe zur Beschreibung des Magneten wird die isothermische Suszeptibilität χ_T

$$\chi_T = \lim_{H\to O} (\partial M(T,H)/\partial H) \qquad \text{II,3}$$

eingeführt.

Die thermodynamischen Größen unterliegen bei einer kritischen Temperatur T_c Singularitäten. Bei ferro- oder antiferromagnetisch geordneten Substanzen verschwindet oberhalb dieser Temperatur, der Curietemperatur bzw. der Néeltemperatur, die spontane langreichweitige magnetische Ordnung. Die Substanz erleidet hier einen Phasenübergang, der als Phasenübergang zweiter Ordnung bezeichnet wird, weil der Ordnungsparameter kontinuierlich auf null zustrebt, während seine erste Ableitung am kritischen Punkt diskontinuierlich ist.

Das Temperaturverhalten der Zustandsvariablen in unmittelbarer Nähe des Curiepunktes wird durch kritische Exponenten beschrieben. Als kritische Exponenten λ einer allgemeinen Funktion $f(\varepsilon)$, die für genügend kleine Werte von ε positiv

und stetig sein soll, definiert man den links- oder rechtsseitigen Grenzwert

$$\lambda = \lim_{\varepsilon \to 0} \frac{\ln f(\varepsilon)}{\ln|\varepsilon|} \quad . \qquad \text{II,4}$$

Der Temperaturparameter

$$\varepsilon = (T/T_c - 1) \qquad \text{II,5}$$

gibt dabei den Abstand zum Curiepunkt an.

Die Beziehung II,4 kann man auch in anderer Form niederschreiben:

$$f(\varepsilon) = a\,\varepsilon^{\lambda}(1 + b\varepsilon^{y} + \ldots) \qquad \left[y > 0\right]. \qquad \text{II,6}$$

Für die einzelnen thermodynamischen Größen werden verschiedene kritische Exponenten eingeführt.

Wir erhalten für die spontane Magnetisierung eines Ferromagneten den Exponenten β:

$$M_S(T,0)/M_S(0,0) = B\cdot|\varepsilon|^{\beta}(1 + \ldots) \quad \left[H = 0\right] . \quad \text{II,7}$$

Es wurde mit der Magnetisierung bei null Grad Kelvin $M_S(0,0)$ "normiert", damit der Koeffizient B von System zu System nur geringfügig variiert.

Für die Suszeptibilität werden zwei kritische Exponenten γ und γ' eingeführt:

$$\chi_T \sim \begin{cases} C'|\varepsilon|^{-\gamma'}(1 + \ldots) & \left[T < T_c,\ H = 0\right] \qquad \text{II,8} \\ C\ \ \varepsilon^{-\gamma}\ (1 + \ldots) & \left[T > T_c,\ H = 0\right] . \qquad \text{II,9} \end{cases}$$

Um ein Maß für die "Flachheit" der kritischen Isotherme $(T = T_c)$ zu erhalten, wird der kritische Exponent δ definiert:

$$H \sim D\ |\ M_H(T = T_c)\ |^{\delta} \qquad \left[T = T_c\right] . \qquad \text{II,10}$$

Die Exponenten α und α' der spezifischen Wärme bei konstantem Feld $H = 0$ werden durch die Relation

$$C_H \sim \begin{cases} A'|\varepsilon|^{-\alpha'}(1 + \ldots) & [T < T_c] \quad \text{II,11} \\ A\ \varepsilon^{-\alpha}\ (1 + \ldots) & [T > T_c] \quad \text{II,12} \end{cases}$$

beschrieben.

II.2 Beziehungen zwischen den Exponenten und die magnetische Zustandsgleichung

Auf Grund von thermodynamischen und statistischen Überlegungen lassen sich folgende Beziehungen zwischen den kritischen Exponenten aufstellen:

$$\alpha' + 2\beta + \gamma' \geq 2 \qquad \text{(Rus63)} \qquad \text{II,13}$$

$$\alpha' + \beta(1+\delta) \geq 2\,. \qquad \text{(Gri65)} \qquad \text{II,14}$$

Weitere Beziehungen gewinnt man in ferromagnetischen Modellen durch zusätzliche Annahmen, von denen die "Scaling"-Hypothese (static scaling hypothesis) die wichtigste ist (Sta71). Diese Hypothese geht von der Annahme aus, daß das Gibbsche Potential $G(\varepsilon,H)$ eine verallgemeinerte homogene Funktion seiner Variablen ist. Dann existieren zwei Parameter a_ε und a_H, so daß die Beziehung

$$G(\lambda^{a_\varepsilon}\varepsilon, \lambda^{a_H} H) = \lambda G(\varepsilon,H) \qquad \text{II,15}$$

für alle positiven Werte von λ richtig ist. Es gibt somit nur noch zwei voneinander unabhängige kritische Exponenten. Weiterhin ergibt sich, daß

$$\gamma = \gamma' \text{ und } \alpha = \alpha' \qquad \text{II,16,17}$$

ist und daß die Beziehungen II,13 und II,14 als Gleichungen gelten, so daß man sie folgendermaßen zusammenfassen kann:

$$\gamma = \beta(\delta - 1). \qquad \text{II,18}$$

Die "Scaling"-Hypothese bestimmt auch die Form der magnetischen Zustandsgleichung II,1, wie Stanley zeigt (Sta71): Da bekanntlich die partielle Ableitung des Gibbschen Potentials nach dem Magnetfeld das Negative der Magnetisierung ist, so erhalten wir sofort aus II,15 die Gleichung

$$M(\varepsilon,H) = \lambda^{a_H-1}\, M(\lambda^{a_\varepsilon}\,\varepsilon,\ \lambda^{a_H} H). \qquad \text{II,19}$$

Diese Beziehung muß für beliebige $\lambda(>0)$ gelten, also auch für $\lambda = |\varepsilon|^{-1/a_\varepsilon}$. Setzt man das für λ ein und benutzt die aus der "Scaling"-Hypothese abgeleiteten Verknüpfungen zwischen den Größen a_ε und a_H und den kritischen Exponenten (Sta71, p.182), so liegt die Zustandsgleichung in folgender einfacher Form vor:

$$m = \begin{cases} F_+(h) & (\text{für } \varepsilon > 0) \\ F_-(h) & (\text{für } \varepsilon < 0) \end{cases} \qquad \text{II,20}$$

bzw.

$$h = \begin{cases} f_+(m) & (\text{für } \varepsilon > 0) \\ f_-(m) & (\text{für } \varepsilon < 0) \end{cases} . \qquad \text{II,21}$$

Als reduzierte Zustandsvariablen treten darin die reduzierte Magnetisierung m

$$m \equiv |\varepsilon|^{-\beta} M(\varepsilon,H) \qquad \text{II,22}$$

und das reduzierte Feld h,

$$h \equiv |\varepsilon|^{-\beta\delta} H(\varepsilon,M) = |\varepsilon|^{\beta+\gamma}\, H(\varepsilon,M) \qquad \text{II,23}$$

auf. Dabei läßt die "Scaling"-Hypothese keine Schlüsse über die Form der Funktionen $F_\pm$ bzw. $f_\pm$ zu. Die kritischen Exponenten spielen also bei der Aufstellung der magnetischen Zustandsgleichung eine wesentliche Rolle und führen über die reduzierten Zustandsvariablen zu Verknüpfungen von Magnetisierung und Magnetfeld, die temperaturunabhängig sind, soweit nicht der kritische Punkt überschritten wird. Die Curietemperatur unterteilt das Zustandsdiagramm in zwei disjunkte Bereiche, einen oberhalb von T_c $(\varepsilon/|\varepsilon| = +1)$ und einen unterhalb von T_c $(\varepsilon/|\varepsilon| = -1)$.

II.3 Die Parameter des verallgemeinerten Modells des Ferromagnetismus

Das verallgemeinerte Modell des Ferromagnetismus, wie es von Stanley vorgeschlagen wird (Sta71) , faßt eine Reihe von Modellansätzen zur Beschreibung des Magnetismus zusammen. In ihm wird eine Austauschwechselwirkung zwischen normierten Spins $\vec{S}_n^D$, die an Gitterplätzen i und j lokalisiert sind, in Form eines Heisenberg-Hamiltonoperators angenommen:

$$H^D = \sum_{(i,j)} - J_{ij} \vec{S}_i^D \cdot \vec{S}_j^D \quad . \qquad \text{II,24}$$

Die Austauschenergie für das Paar (i,j) von Spins wird mit dem Minuszeichen versehen, damit die Energie für parallele Spins positiv gezählt werden kann. Der Index D, die "Spindimension", gibt die Anzahl der Komponenten der Spinvektoren an, die im Skalarprodukt auftreten. Dem Isingmagneten wird die Dimension D = 1 zugeordnet, weil dieses Modell nur eine Spinkomponente (S_{nz}) zuläßt, während der Heisenbergmagnet dreidimensional ist. Neben der Spindimension treten in dem Modell weitere Parameter auf:

1. die Spinquantenzahl S der Atomspins,
2. die Austauschwechselwirkung J_{ij} zwischen den Spins und
3. als impliziter Parameter die Dimension des Gitters, die im wesentlichen die Form der Gittersumme bestimmt.

Einfluß auf das Aussehen des Hamiltonoperators haben sowohl die Spindimension D als auch die Form der Austauschwechselwirkung. Die Tabelle 1 führt die Hamiltonoperatoren für spezielle Spindimensionen an. Die spitzen Klammern sollen andeuten, daß die Summation nur über benachbarte Spins durchgeführt wird. Für das Isingmodell (D = 1) ist die analytische Lösung exakt nur bis zu zwei Gitterdimensionen ($d \leq 2$) möglich (Isi25, Ons44), die Rechnungen für ein dreidimensionales Gitter (d = 3) müssen mit Hilfe einer Reihenentwicklung gelöst werden. Exakte Lösungen für das

D	*Hamiltonian*	*Name*	*System*
1	$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle ij \rangle} S_{ix} S_{jx}$	Ising model	one-component fluid; binary alloy, mixture
2	$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle ij \rangle} (S_{ix} S_{jx} + S_{iy} S_{jy})$	plane rotator model (Vaks-Larkin model)	λ-transition in a Bose fluid
3	$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle ij \rangle} (S_{ix} S_{jx} + S_{iy} S_{jy} + S_{iz} S_{jz})$	classical Heisenberg model	ferromagnet; antiferromagnet
⋮			
∞	$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle ij \rangle} \left(\sum_{n=1}^{\infty} S_{in} S_{jn} \right)$	spherical model	none

Tabelle 1: Die Hamiltonoperatoren des verallgemeinerten Modells des Ferromagnetismus für verschiedene "Spindimensionen" nach Stanley und Lee (aus Sta71). Der Parameter D ist die Spindimension. Die spitzen Klammern deuten an, daß die Summation nur über die nächsten Nachbarn durchgeführt wird.

XY-Modell (D = 2), dem übrigens kein magnetisches System entspricht, und für das Heisenbergmodell (D = 3) sind nur bei einer Gitterdimension (d = 1) und H = O möglich (vgl. auch Sta71, p. 110). Auch für Spins mit mehr als drei Dimensionen bleibt das System formal wohldefiniert, obwohl es völlig unanschaulich wird. Für D → ∞ ist das Modell mit dem sphärischen Modell (BerK52) identisch, das ursprünglich als kollektives Modell entwickelt wurde: Es können die eindimensionalen Spins S_i des Systems alle Werte annehmen, solange die Summe ihrer Quadrate gleich der Anzahl N der Spins im betrachteten System ist:

$$\sum_{i=1}^{N} S_i^{\,2} = N \qquad \text{II,25}$$

Lösungen für dieses Modell existieren für alle H und Gitterdimensionen $d \leq 3$.

Die Tabelle 2 soll dazu dienen, die Abhängigkeit des Hamiltonoperators von der Form der Austauschwechselwirkung zwischen den Spins deutlich zu machen. Diese Wechselwirkung wird in vielen Modellen als sehr kurzreichweitig angesetzt, indem man nur die nächsten Nachbarn in der Summe berücksichtigt. Erweitert man die Wechselwirkung auch auf die übernächsten Nachbarn und auf weiter entfernte Spins, so wird die Summation des Hamiltonoperators mathematisch weit komplizierter, und es müssen Annahmen über die Abstandsabhängigkeit der Wechselwirkung gemacht werden. Numerische Rechnungen am Isingmodell und auch am sphärischen Modell sind deshalb mit einer Wechselwirkung $J_{ij} = 1/r^{(d+x)}$ durchgeführt worden, die stetig mit der Entfernung $r = r_i - r_j$ zwischen den Gitterplätzen abnimmt (HilJ65, Joy66).

Für eine unbegrenzte Wechselwirkungslänge (infinite interaction range model) geht dieses Modell in das Molekularfeldmodell (MF) über. Im Molekularfeldmodell wird angenommen, daß der Einfluß, den die Gesamtheit aller Spins auf einen einzelnen Spin S_i hat, durch ein effektives Magnetfeld ersetzt werden kann, das dem thermischen Mittelwert der z-Komponente aller Spins proportional ist. Für den Hamiltonoperator bedeutet das:

$$H_i = -2 \sum_j J_{ij} < S_z > S_{iz} \quad . \qquad \text{II,26}$$

Das Molekularfeldmodell repräsentiert ein magnetisches System, in dem jeder Spin mit jedem Spin gleich stark wechselwirkt.

Weitere Aussagen über die Form der Wechselwirkung betreffen die Uniformität und die Isotropie. Ist die Austauschwechselwirkung nicht uniform in ihrer Richtung, so hängt die Kopplung zwischen den Spins vom jeweiligen Gitterplatz ab. Für Spins beispielsweise, die in derselben Gitterebene liegen, ist die Wechselwirkung stärker als zwischen den Spins übereinanderliegender Ebenen. Wenn die Wechselwirkung zwischen benachbarten Spins anisotrop ist, so muß das skalare Pro-

Form der Austauschwechselwirkung	Hamiltonoperator	Annahmen über J_{ij} Beispiele
<u>langreichweitig</u>	$H_D = \sum_{(i,j)} -J_{ij}\, \vec{S}_i^D \cdot \vec{S}_j^D$	$J_{ij} = 1/r^{(d+x)}$ (HilJ65, Joy66)
	$H_i = -2 \sum_j J_{ij} \langle S_z \rangle S_{iz}$	$J_{ij} = \text{const}$ MF-Modell
<u>kurzreichweitig</u>		Summation nur über die nächsten Nachbarn
uniform	$H^D = -J \sum_{<i,j>} \vec{S}_i^D \cdot \vec{S}_j^D$	$J_h = J_v$, gitterplatzunabhängig
nicht uniform	$H^D = - \sum_{<i,j>} J_{ij}\, \vec{S}_i^D \vec{S}_j^D$	$J_h \neq J_v$; extrem $J_h = 0$ $0 < J_h/J_v \leq 1$ (Cha52, PauS71, PauS72)
anisotrop	$H^D = - \sum_{<i,j>} [J_x S_{ix} S_{jx} +$ $+ J_y S_{iy} S_{jy} + \ldots . J_n S_{in} S_{jn}]$	$J_x = J_y = \ldots J_n \Leftrightarrow J_x \neq J_y \neq \ldots\ldots$ (JasW68, Obo067)

<u>Tabelle 2:</u> Die Form des Hamiltonoperators bei unterschiedlicher Austauschwechselwirkung J_{ij} zwischen Spins $\vec{S}_n^D$ an Gitterplätzen i und j (vgl. Text).
In der Tabelle gelten folgende Bezeichnungen: D: Spindimension, <i,j>: Summation nur über die nächsten Nachbarn, r: Abstand der Spins, d: Gitterdimension, J_h und J_v: Stärke der Austauschwechselwirkung zwischen Spins übereinanderliegender Gitterebenen bzw. in der Gitterebene, $J_x \ldots J_n$: Wechselwirkungsstärke für die verschiedenen Spinkomponenten.

dukt der Spins durch eine Summation über das Produkt ihrer kartesischen Koordinaten S_{in} mit verschiedenen Wechselwirkungsfaktoren ersetzt werden.

Theoretische Analysen verschiedener magnetischer Systeme mit einer Reihe hier angeführter Hamiltonoperatoren haben ergeben (vgl. Sta71), daß die kritischen Exponenten nur von

1. der Gitterdimension d und
2. der Spindimension D

abhängen, jedoch unabhängig davon sind, ob

1. die Spinquantenzahl S groß oder klein ist,
2. eine starke Austauschwechselwirkung vorhanden ist oder nicht,
3. die Reichweite der Wechselwirkung über die nächsten Nachbarn hinausgreift oder nicht (solange sie nicht infinit wird),
4. die Wechselwirkung uniform ist oder nicht (solange keine Entkopplung in Teilgitter stattfindet) und
5. die Wechselwirkung eine große oder nur eine kleine Anisotropie hat (solange sie nicht isotrop ist).

Diese Aussage wird als Universalitätshypothese (Gri70) bezeichnet. Sie sollte nur bei den in Klammern angeführten Extremfällen eingeschränkt sein:

1. Bei extrem langer Reichweite verändern sich die kritischen Exponenten in Richtung der Werte der Molekularfeldtheorie (HilJ65, Joy66).
2. Erst dann, wenn die Wechselwirkung J_h zwischen übereinanderliegenden Schichten zu null wird, zerbricht das dreidimensionale Gitter in ein System von zweidimensionalen Gittern, wobei die vertikale Kopplung J_v von null verschieden sein soll (vgl. Rechnungen von Cha57 , PauS71, PauS72).
3. Studien an einem klassischen Heisenbergmodell führen zu dem Schluß, daß die kritischen Exponenten diskontinuierlich von ihren D=3-Werten zu ihren D=1-Werten springen, wenn man nur die leichteste Andeutung einer Anisotropie zuläßt (JasW68, vgl. auch OboO67).

Aus diesen Überlegungen geht hervor, daß man für alle kurzreichweitigen Wechselwirkungen nur die Spindimension D zu betrachten braucht, wenn man die Gitterdimension als konstant d=3 annimmt. Exakt lösbar sind aber für drei Gitterdimensionen nur das sphärische Modell und das Molekularfeldmodell, für die man allerdings unterschiedslos den experimentell nicht verifizierten Wert $\beta = 1/2$ erhält. Für das wichtigste Modell, das dreidimensionale Heisenbergmodell, existieren für β nur grobe Abschätzungen. Diese sind in der Tabelle 3 neben den Vorhersagen der exakt lösbaren Modelle verzeichnet. Das eindimensionale Isingmodell (D = 1, d = 1) fehlt, weil es keinen Phasenübergang bei endlicher Temperatur hat.

Model system	α	α'	β	γ	γ'	δ	η	ν	ν'
MF	0 (discont.)	0 (discont.)	$\frac{1}{2}$	1	1	3	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$
Spherical $(d=3)$	-1	—	$\frac{1}{2}$	2	—	5	0	1	—
Ising $(d=3)$	$\simeq\frac{1}{8}$	$\frac{1}{8}$–$\frac{1}{16}$	0·312	1·25	1·25–1·31	$\simeq 5$	0·03–0·05	$\simeq 0{\cdot}63$	—
XY $(d=3)$	$\simeq 0$ (logar.)	—	—	$\simeq 1{\cdot}33$	—	—	—	—	—
Heisenberg $(d=3)$	$\simeq -0{\cdot}1$	—	$\simeq 0{\cdot}36$	$\simeq 1{\cdot}40$	—	$\simeq 5$	0·03–0·04	$\simeq 0{\cdot}71$	—
Ising $(d=2)$	0 (logar.)	0 (logar.)	$\frac{1}{8}$	1·75	1·75	15	0·25	1	1

Tabelle 3: Vorhersagen verschiedener Modelle für die kritischen Exponenten (aus JonM74)

II.4 Renormierungsmodelle

Als "Renormierungsmodelle" werden zwei Modelle bezeichnet, deren Ausgangspunkte grundverschieden sind. Beiden Modellen ist jedoch gemeinsam, daß sie Korrekturen zu den als Grenzwerten angenommenen kritischen Exponenten des sphärischen Modells ausrechnen.

Das Modell von Stanley et al. (StaH71) geht von der Universalitätshypothese aus und beschreibt, wie die kritischen Exponenten von der Spindimension D abhängen. Zur Berechnung eines kritischen Exponenten aus der Spindimension

schlagen die Autoren folgende bilineare Form vor:

$$\lambda(D) = \overline{\lambda}(D) \cdot \lambda_{SM} \qquad \text{II,27}$$

mit

$$\overline{\lambda}(D) = \frac{b_\lambda + D}{c_\lambda + D} \quad , \qquad \text{II,28}$$

wobei b_λ und c_λ Zahlen sind, die für den jeweiligen kritischen Exponenten charakteristisch sind, und λ_{SM} der Wert des Exponenten für das sphärische Modell ist. Die Koeffizienten b_λ und c_λ können bestimmt werden, wenn die Größe von λ für zwei weitere Spindimensionen bekannt ist (Anpassen der Formel an bekannte Werte, die aus anderen Rechnungen gewonnen wurden). Beispiele für b_λ und c_λ sind in der Tabelle 4 neben den Werten der kritischen Exponenten für die niedrigsten Spindimensionen verzeichnet.

Die Annahme, daß ein allgemeiner kritischer Exponent in der Form II,27 geschrieben werden kann, garantiert, daß der Exponent eine monoton wachsende Funktion der Spindimension D ist; denn die partielle Ableitung von $\lambda(D)$ nach D bleibt für alle D positiv.

Neben dem semiempirischen Ansatz von Stanley et al. gibt es das Renormierungsmodell von Wilson, das in einer Folge von Veröffentlichungen bis zur Anwendung der Feynmangraphen-Methode weiterentwickelt wurde. Ausgangspunkt ist das Modell von Kadanoff (Kad66), das magnetische Phasenübergänge als Phänomen vieler zu "Blocks" zusammengefaßter Spins verstehen will. Wilson (Wil71a) stellt zunächst für die Kopplungsparameter der Spin-Spin-Wechselwirkung und der Wechselwirkung mit dem äußeren Feld Differentialgleichungen auf und versucht sie mit Hilfe des Formalismus der Renormierungsgruppen zu lösen. In einem weiteren Schritt ersetzt er den effektiven Blockspin durch ein Spinfeld $s_L(x)$, dessen Wellenlänge größer als die Blocklänge L ist. Somit ist $s_L(x)$ in guter Näherung innerhalb des Blockes konstant. Die Größe $s_L(x)$ kann alle Werte zwischen $-\infty$ und $+\infty$ annehmen. Das mathematische Konzept der Lösung setzt sich aus der aufeinan-

λ	b_λ	c_λ	$\lambda(1)$	$\lambda(2)$	$\lambda(3)$	$\lambda(4)$	$\lambda(5)$	$\lambda(\infty) = \lambda_{5M}$
β	4	7	5/16 (0.312±0.004)	1/3	7/20 (0.38)	3/8	6/10	1/2
γ	4	7	5/4 (1.250±0.002)	4/3 (1.32±0.02)	7/5 (1.38±0.01)	3/2 (1.50±0.05)	8/5 (1.60±0.05)	2
δ	7	7	5 (5.0±0.1)	5 -	5 (5.0±0.1)	5	5	5
α	-2	7	1/8 (0.125)	0 (0)	-1/10 (-0.07±0.05)	-1/4 (-0.2±0.1)	-6/15 (-0.3±0.1)	-1

Tabelle 4: Renormierungskoeffizienten der bilinearen Form von Stanley et al. und Berechnung der kritischen Exponenten für die niedrigsten Spindimensionen (aus StaH71).
Die in Klammern gesetzten Zahlen sind die Werte aus anderen Modellrechnungen (Literaturhinweis in StaH71).

derfolgenden Integration von Impulsschalen zusammen. Dazu wird zunächst die Blockspinvariable $s_n^{\rightarrow}$ nach den Wellenfunktionen lokalisierter Wellenpakete entwickelt und dann durch eine Fouriertransformation in den Phasenraum transformiert.

Als bisher letzte Methode werden Feynmangraphen benutzt (Wil72, WilF72, BréW72, BréW73), um sowohl für einen Isingmagneten als auch für einen Heisenbergmagneten die kritischen Exponenten zu berechnen. Der Unterschied beider Rechnungen besteht darin, daß beim Heisenbergmagneten die Gewichte der verschiedenen Feynmangraphen von der Zahl n abhängen, der Anzahl der internen Indizes oder Freiheitsgrade der Spindichte, und beim Isingmagneten nicht. Wichtiger jedoch ist das Erscheinen von "massenlosen Goldstein-Modes" (BréW72), das sind Spinwellen unterhalb der kritischen Temperatur, die zu Infrarot-Divergenzen führen. Diese entstehen dadurch, daß das Spinsystem unterschiedlich stark auf Störungen transversal oder parallel zu einer ausgezeichneten Magnetfeldrichtung reagiert. Benutzt wird der Hamiltonoperator für eine Spindichte $s_i(x)$ mit n internen Freiheitsgraden:

$$H^n = \int d^d x \left[\frac{1}{2} \sum_{i=1}^{n} \left[(\nabla s_i)^2 + r_o \, s_i^2 \right] + \frac{u_o}{4!} \left(\sum_{i=1}^{n} s_i^2 \right)^2 - H \, s_n \right], \qquad \text{II,29}$$

wobei konventionsgemäß das angelegte Feld H in die Richtung i=n zeigen soll. r_o und u_o sind Suszeptibilitäts- und Kopplungskonstanten. In Erweiterung des sphärischen Modells tritt ein Ausdruck mit s_i^4 auf.

Die Zahl n nimmt in diesem Modell den Platz der Spindimension D ein. Analog zum verallgemeinerten Modell des Ferromagnetismus werden auch hier im Falle eines Isingmagneten dem Spinfeld der Freiheitsgrad n=1 zugeordnet und für einen Heisenbergmagneten n=3 angenommen.

Aus den umfangreichen Rechnungen erhält man die in der Tabelle 5 aufgezeichneten Gleichungen für die Exponenten β, γ

δ. In diesen Beziehungen, die nach $\varepsilon = 4-d$, d = Raumdimension, entwickelt wurden, sind höhere Glieder als ε^2 vernachlässigt. Zu betonen ist, daß die Formeln streng genommen nur für $\varepsilon \to 0$ gelten.

Exponent	Beziehung
β Ising	$\beta = 1/2 - \frac{3}{2(n+8)}\varepsilon + \frac{(2n+1)(n+2)}{2(n+8)^3}\varepsilon^2 + O(\varepsilon^3)$
Heisenberg	$\frac{1}{\beta} = 2 + \frac{6}{n+8}\varepsilon + 4\frac{(n+5)(7-n)}{(n+8)^3}\varepsilon^2 + O(\varepsilon^3)$
γ	$\gamma = 1 + \frac{(n+2)}{2(n+8)}\varepsilon + \frac{(n+2)(n^2+22n+52)}{4(n+8)^3}\varepsilon^2 + O(\varepsilon^3)$
δ	$\delta = 3 + \varepsilon + \frac{n^2+14n+60}{2(n+8)^2}\varepsilon^2 + O(\varepsilon^3)$

Tabelle 5: Abhängigkeit der kritischen Exponenten β, γ und δ von der Anzahl n der internen Freiheitsgrade (nach BréW72 und BréW73). Entwickelt wurde nach $\varepsilon=4-d$; d ist die räumliche Gitterdimension.

III Methoden zur experimentellen Bestimmung des kritischen Exponenten β

Es soll kurz auf die experimentellen Methoden zur Bestimmung der Magnetisierung im kritischen Bereich eingegangen werden, um zu untersuchen, ob verschiedene Meßmethoden unterschiedliche Empfindlichkeit auf die im ferromagnetischen Gitter vorhandenen Wechselwirkungen haben. Einzelheiten aller Meßmethoden sowie eine ausführliche Diskussion der Vor- und Nachteile der verschiedenen Techniken findet man bei Heller (Hel67) und bei Reno (Ren70).

III.1 Magnetisierungsmessungen

Alle Magnetisierungsmessungen bestimmen das totale magnetische Moment der zu untersuchenden Probe. Daraus kann bei bekanntem Probenvolumen die Magnetisierung berechnet werden. Bei dieser Methode werden nur makroskopische Effekte gemessen, denn es wird über alle mikroskopischen Wechselwirkungen, die im Kristallgitter zum Ferromagnetismus beitragen, gemittelt. Gemittelt wird auch über die Anisotropiekräfte des Polykristalls, die die Wirkung des äußeren Magnetfeldes schwächen, weil sie die Magnetisierung bevorzugt entlang einer gewissen Kristallrichtung, der "leichten Achse", ausrichten wollen. Kurz unterhalb der Curietemperatur führen zudem Verunreinigungen im Kristallgitter zu Inhomogenitäten im entmagnetisierenden Feld und bei der Ausrichtung der magnetischen Momente. Verläßliche Ergebnisse erhält man somit nur, wenn man Einkristalle mit sorgfältig bearbeiteter Oberfläche verwendet.

Bei diesen Messungen kann man nicht darauf verzichten, relativ starke Magnetfelder anzulegen. Da jedoch der kritische Exponent laut Definition das Verhalten der spontanen Magnetisierung bei externem Nullfeld beschreibt, so kann man β nur durch eine Extrapolation unter Benutzung der Zustandsgleichung des magnetischen Systems (KouC68) erhalten.

Mit bedeutend kleineren Feldern kommt die "Knotenmethode" (Kink point method) aus (WojR68, RayW68, Arr71). Diese Methode benutzt folgenden Effekt: Eine magnetische Probe geeigneter äußerer Form (z.B. ein Toroid), die in einem kleinen Magnetfeld H_o (bis zu 300 G) angebracht ist, erleidet einen Übergang von einem magnetisch uniform ausgerichteten Zustand in einen nicht uniform ausgerichteten, wenn sie abgekühlt wird. Wenn man die Magnetisierung über der Temperatur aufträgt, macht sich die Übergangstemperatur durch einen starken Knick in der Meßkurve bemerkbar. Die Theorie zeigt, daß der "Knotenpunkt" gerade bei der Temperatur auftritt, bei der das innere Feld $H = H_o - D\, M_z(H,T)$ verschwindet. An diesem Punkt und für alle tieferen Temperaturen ist die Magnetisierung in der z-Richtung, der Richtung von H_o, konstant und gleich dem Quotienten aus H_o und dem Entmagnetisierungsfaktor D.

Wenn man das angelegte Feld verkleinert, nähert sich die Übergangstemperatur T_t dem Curiepunkt T_c. Damit ließe sich T_c leicht aus den "Knotentemperaturen" T_t bestimmen, indem man aus den Messungen für verschiedene H_o auf $H = 0$ extrapoliert. Wie die Arbeit von Anderson et al. (AndA71) jedoch zeigt, bereitet gerade diese Extrapolation Schwierigkeiten: Die sich aus der Molekularfeldnäherung ergebende quadratische Abhängigkeit $T_t \sim H^2$ muß durch eine Extrapolation mit Polynomen höherer Ordnung ersetzt werden.

III.2 Neutronenstreuung

Die Neutronenstreuung ist eine mikroskopische Technik. Sie kann zur Untersuchung magnetischer Substanzen verwendet werden, weil die magnetische Streuung von Neutronen der Wellenlänge 1...5 Å an ausgerichteten Kristallelektronen vergleichbar ist mit der Streuung an Atomkernen. Man unterscheidet zwei Arten von magnetischer Streuung (Gen63):

1. Die magnetische Bragg-Streuung, die Ergebnisse über die Ausrichtung und die Größe der magnetischen Momente im geordneten Zustand liefert. Zusätzlich dazu erhält man Auskunft über die Form der Magnetisierung um ein Gitterion.

2. Die diffuse Streuung, die bei Messungen oberhalb des Curiepunktes Werte für Spinrelaxationsprozesse liefert (vgl. PasB65).

In der Praxis wird die Neutronenstreuung meist mit einem monochromatischen polarisierten Neutronenstrahl durchgeführt (BakR68). Beim Durchlaufen der willkürlich orientierten Domänen des Ferromagneten unterhalb T_c erfährt der polarisierte Strahl eine Entpolarisierung. Unglücklicherweise hängt der Grad der Entpolarisierung auch von der Domänengröße ab, so daß eine eindeutige Bestimmung der Magnetisierung der untersuchten Folien durch zusätzliche Annahmen über die Weißschen Bezirke gestützt werden muß.

III.3 Hyperfeinfeldmessungen

Unter dem Begriff "Hyperfeinfeldmessungen" werden vier Meßmethoden zusammengefaßt, die die magnetische Wechselwirkung zwischen dem Atomkern und den Elektronen des Gitters über Signale messen, die vom Atomkern ausgesendet werden. Als mikroskopische Meßmethoden sind auch Hyperfeinfeldmessungen viel empfindlicher auf lokale Störungen im Gitter als Magnetisierungsmessungen. Wegen des unterschiedlichen Ursprungs der Hyperfeinfelder für Fremdatome liefert jede Untersuchung, die mit Hilfe eines Fremdatoms als Sonde gemacht wird, keine vom jeweiligen Sondenkern losgelösten Ergebnisse. Man kann also nur für einen Nickelkern als Sonde erwarten, daß man eine gute "Reproduktion" des magnetischen Verhaltens des Nickelgitters (bzw. den richtigen kritischen Exponenten) erhält. Solch eine Untersuchung wird in dieser Arbeit zum ersten Mal für Nickel durchgeführt.

III.3.1 Magnetische Kernresonanz (NMR) und ferromagnetische Resonanz

Bekanntlich erfahren Kernzustände in einem konstanten Magnetfeld eine Zeeman-Aufspaltung in Unterniveaus, deren Energieabstand dem g-Faktor und dem am Kern wirksamen Magnetfeld H_o proportional ist. Diese magnetischen Unterzustände sind

nicht gleich häufig besetzt, sondern ordnen sich im thermischen Gleichgewicht nach der Boltzmann-Beziehung (Abr62). Um Übergänge zwischen den Unterniveaus zu erzwingen, wird durch ein senkrecht zu H_o eingestrahltes Hochfrequenzfeld Energie an das System abgegeben. Die abgegebene Energie erreicht ihr Maximum (ihre Resonanz), wenn die Frequenz ω des eingestrahlten Hochfrequenzfeldes der Larmorbedingung genügt:

$$\hbar\omega_L = \mu_N \, g \, H_o. \qquad \text{III,1}$$

Die so erhaltene Resonanz-Absorptionslinie wird durch Relaxationsprozesse verbreitert.

Mit der NMR ist eine sehr genaue Bestimmung der Hyperfeinfelder möglich, da äußerst schmale Absorptionslinien beobachtet werden können. Zudem kann man die dynamischen Eigenschaften der Hyperfeinfelder aus den Relaxationszeiten der Spin-Spin- und der Spin-Gitter-Wechselwirkungen des Gitters direkt ableiten (Mor64). Wie auch bei den beiden folgenden Methoden ist es möglich, die Störung der unmittelbaren Umgebung der Fremdatome durch "Satellitenlinien" auszumessen.

Die NMR hat allerdings schwerwiegende Nachteile, die dazu führten, daß bis vor kurzem keine Bestimmung der kritischen Exponenten möglich war.

Die Nachteile der NMR für die Bestimmung des kritischen Exponenten β sind - summarisch ausgedrückt - in der Verschlechterung des Signal-Rausch-Verhältnisses zu suchen. Im einzelnen wird die "Dämpfung" des Signals durch das Zusammenwirken einer Reihe von Prozessen bewirkt (HelB65, SenB66, Ren70):

1. Die Leistung, die bei Resonanz vom Kernspinsystem absorbiert wird, nimmt mit wachsender Temperatur ab, da sich durch eine Verschiebung des Boltzmann-Gleichgewichts für die NMR ungünstigere Verhältnisse der Besetzungszahlen der Unterniveaus ergeben. Zusätzlich dazu wird die Spin-Spin-Relaxationszeit mit höherer Temperatur kleiner, so daß die Resonanz stark verbreitert wird.
2. Wird die NMR auf ferromagnetische Materialien angewendet, so kommt es am Kernort zu einer Hochfrequenzverstärkung (enhancement) um einen Faktor von ungefähr 10^4. Das ver-

größert zwar das Signal um denselben Faktor, erschwert aber die Interpretation von NMR-Daten (Ren70).

3. Wegen des Skineffektes in Leitern kann das Hochfrequenzfeld nur sehr wenig in das Metall eindringen. Für Nickel liegt die Eindringtiefe für eine 27 MHz-Strahlung bei 10^{-4} cm, so daß man bei den Experimenten Pulver benutzen muß, dessen Teilchengröße von dieser Größenordnung ist. Abgesehen von den Schwierigkeiten bei Experimenten mit Pulver hat das den großen Nachteil, daß die Hochfrequenzdetektoren eine Mischung aus absorptiven und dispersiven Modes empfangen.
4. Als größtes Hindernis tritt die Abschirmung der Kernspins durch die Elektronenspins auf. Da in einem Ferromagneten die Elektronensuszeptibilität nach unendlich geht, wenn man sich dem Curiepunkt von "unten" her nähert, so wird in diesem Temperaturbereich der Hauptanteil der Hochfrequenzenergie von den Elektronenspins absorbiert. Damit wird die ohnehin schon sehr schwache NMR-Linie von starker Elektronenspinabsorption überlagert.

Bei Untersuchungen an verdünnten Legierungen hat die gewöhnliche NMR im Vergleich zu den anderen Meßmethoden dadurch einen Nachteil, daß zur Ausbildung des Resonanzsignals eine größere Anzahl von Probenkernen ($\sim 10^{18}$ Atome, Fremdatomanteil $\geq$ 1%) angesprochen werden muß, was die Untersuchung von "unendlich verdünnten" Legierungen verhindert. Besser geeignet zur Untersuchung kritischer Phänomene ist die im letzten Jahr entwickelte Nullfeld-Transmissions-Resonanztechnik (ManS73), die gerade in der Nähe des Curiepunktes ihr experimentelles Optimum hat. Bei dieser Technik wird das zu untersuchende Material in Form eines dünnen Films ($\sim 50\mu$) als gemeinsame Wand zweier Resonatoren ausgebildet, von denen der eine der Mikrowellensender ist. Die im Sender schwingende Mikrowelle erzeugt eine resonante Spinpräzession in der Oberfläche der Folie, die durch die Probe wandert und im zweiten Resonator ein Resonanzsignal anfacht. Es ist aus der Veröffentlichung von Manikopoulos et al. (ManS73) nicht ersichtlich, welche experimentellen

Schwierigkeiten bei dieser vielversprechenden Methode bisher die Bestimmung des kritischen Exponenten β anderer Ferromagnetika als dem des Gadolinium verhindert haben.

III.3.2 Mößbaereffekt

Beim Mößbaereffekt wird ausgenutzt, daß eine γ-Strahlung sehr großer Energieschärfe ausgesendet wird, wenn ein Kern, der in einem Festkörper eingebettet ist, ohne Phononenemission ("rückstoßfrei") in seinen Grundzustand zerfällt. Die Linienbreite ist die natürliche Linienbreite Γ, die dem Inversen der Halbwertszeit proportional ist: $\Gamma \sim \hbar/T_{1/2}$. Bei genügend großer Lebensdauer eines Kernniveaus lassen sich somit noch γ-Linien trennen, die nur geringen Energieunterschied haben. Solch ein Fall liegt z.B. beim 14.4 keV-Niveau des ^{57}Fe vor, das bei Anwesenheit eines Magnetfeldes in vier äquidistante Zeemanniveaus aufspaltet und beim Zerfall in den ebenfalls aufgespaltenen Grundzustand sechs in ihrer Energie wenig verschiedene γ-Linien ausstrahlt. Mit Hilfe eines bewegten Absorbers, dessen Absorptionslinie durch Dopplerverschiebung mit den jeweiligen Linien in Resonanz gebracht wird, werden die Energieunterschiede ausgemessen. Damit läßt sich bei bekannten Dopplergeschwindigkeiten die Größe des am Eisenkern wirksamen Hyperfeinfeldes bestimmen.

Der Vorteil der Mößbauertechnik liegt darin, daß sie mit sehr geringen Mengen von radioaktiven Probenkernen ($\sim 10^{15}$ Atomen) auskommt und daß sie sowohl auf Metalle als auch auf Isolatoren angewendet werden kann. Die Anwendung des Mößbaereffekts ist allerdings nicht unbegrenzt, da einmal nur wenige Mößbauerniveaus mit genügend kleiner Linienbreite bekannt sind und zum anderen die rückstoßfreie Emission nicht immer möglich ist. Zusätzliche Schwierigkeiten treten auf, weil die Linienbreite nicht nur von der Lebensdauer des Kernniveaus sondern auch von der Absorberdicke abhängt (HohR69).

In der Nähe des Curiepunktes von Ferromagnetika verringert sich zudem der Abstand der einzelnen γ-Linien so sehr, daß die Aufspaltung die Linienbreite unterschreitet (Gum70). Die Verbesserung von Benski (Ben71), der mit Hilfe eines

kleinen Magnetfeldes passender Richtung zwei der sechs γ-Linien unterdrückt, erlaubt eine bessere Interpretation der nicht aufgelösten Spektren, allerdings bleiben bei der Bestimmung der Hyperfeinfelder weiterhin die Unsicherheiten, die durch die inhomogene Linienverbreiterung der Spektren im kritischen Temperaturbereich in die Messung hineingetragen werden.

III.3.3 Gestörte Winkelkorrelation und gestörte Winkelverteilung

Als weitere Methoden eignen sich die gestörte Winkelkorrelation und die gestörte Winkelverteilung zur Bestimmung innerer Felder. Das Prinzip dieser beiden Methoden ist identisch: Man verschafft sich zunächst ein System ausgerichteter radioaktiver Kerne, die eine anisotrope γ-Winkelverteilung haben, und beobachtet dann die Störung (Rotation) dieser Winkelverteilung durch ein stationäres extranukleares Magnetfeld. Die Kernausrichtung - das bedeutet die ungleichmäßige Besetzung der magnetischen Unterzustände des Kernniveaus - geschieht dadurch, daß man eine bestimmte Richtung $\vec{k}_1$ als Quantisierungsachse auszeichnet, und zwar bei der Winkelkorrelation durch Aussuchen der Kerne einer γγ-Kaskade, die ihr erstes γ-Quant in die Richtung $\vec{k}_1$ ausgesendet haben, und bei der gestörten Winkelverteilung durch Anregen des Kernniveaus mit Teilchenstrahlen, die aus der Richtung $\vec{k}_1$ kommen.

Vom Prinzip her hat die gestörte Winkelkorrelation den vorher erwähnten Meßmethoden gegenüber große Vorteile:

1. Man braucht nur geringe Mengen von Sondenkernen (10^{15} Atome bei der Winkelkorrelation und 10^{10} bei der Winkelverteilung).
2. Die Amplituden der Meßsignale sind von der Temperatur unabhängig.
3. Man kann auf Hochfrequenzfelder verzichten.
4. Die Meßkurven liegen als sinusförmige Oszillation vor.

Bisher ist diese Meßtechnik allerdings nur in drei Arbeiten zur Bestimmung des kritischen Exponenten β verwendet worden, u.a. für ^{100}Rh in Nickel (Ren70, RenH70). Die Anwendung des

^{100}Rh auf kritische Phänomene ist wegen der großen Sensitivität dieser Probe auf geringe Magnetfelder (vgl. Kap. V) verheißungsvoll, doch darf man nicht vergessen, daß wegen der sehr kurzen Lebensdauer des ^{100}Rh-Mutterzustandes (∿4 Tage) keine langen Meßreihen mit einer einzigen Fremdatom-Gastgitter-Probe möglich sind. Verschiedene Proben aber können unterschiedliche Curiepunkte haben.

Da es nur wenige für die γγ-Winkelkorrelation geeignete Kernzustände gibt - dabei keinen einzigen Nickelzustand - können Untersuchungen nur an ausgewählten Systemen vorgenommen werden. Der Vorteil der in dieser Arbeit benutzten "In-Beam"-Methode wiegt in diesem Zusammenhang schwer:
Es können bei diesen Experimenten die zu untersuchenden Substanzen mit praktisch beliebigen Fremdatomen dotiert werden. Dabei kann man die in der Nähe der jeweiligen Targetsubstanz ($\Delta Z = 0, 1, 2, \ldots$) gelegenen Sondenkerne durch die Kernreaktion im Gastgitter selber erzeugen, während man "exotische" Kerne durch Rückstoßimplantation in das Gastgitter einpflanzen kann.

Doch durch den Teilchenbeschuß gibt es auch Nachteile:

1. Das lokale Aufheizen des Targets durch den Teilchenstrahl erzeugt Temperaturgradienten, die bei temperaturabhängigen Hyperfeinfeldern zur Dämpfung der γ-Winkelfunktion führen. Diese Dämpfung wird in unmittelbarer Nähe der Curietemperatur so stark, daß bei dem Stand der experimentellen Technik oberhalb von $T_c - T = 1^oC$ keine zuverlässigen Werte für die Hyperfeinfelder mehr gefunden werden können.
2. Durch die rückgestoßenen Kerne und den hochenergetischen Ionenstrahl werden Störstellen gebildet, die über die Quadrupolwechselwirkung die Winkelverteilung stören und die ferromagnetischen Domänen durch die Störstellen in Mitleidenschaft ziehen.

(3. Die bei der Kernreaktion frei werdenden Neutronen können die gemessenen Winkelverteilungsspektren in Form von "Beulen" stören.)

IV Meßprinzip (Formale Beschreibung der gestörten Winkelkorrelation)

IV.1 Allgemeine Form der zeitabhängigen Winkelkorrelation

Die Messungen für diese Arbeit wurden nach der TDPAD-Methode (time differential perturbed angular distribution) durchgeführt. Da sich das Prinzip dieser Methode nicht von der gestörten Winkelkorrelation an γγ-Kaskaden unterscheidet, kann ich auf die ausführliche Literatur verweisen, die über die γγ-Kaskaden erschienen ist (Ald52, FraS64, SteF64, AldS64) und führe hier nur die zeitabhängige Korrelationsfunktion zwischen den Richtungen $\vec{k}_1$ und $\vec{k}_2$ zweier aufeinanderfolgender γ-Quanten eines Atomkerns an (FraS64):

$$W(\vec{k}_1\ \vec{k}_2\ t) = \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ N_1 N_2}} A_{k_1}(1)\ A_{k_2}(2)\ G^{N_1 N_2}_{k_1 k_2}\ \left[(2k_1+1)(2k_2+1)\right]^{-1/2}$$

$$\cdot Y^{N_1 *}_{k_1}(\Theta_1 \phi_1)\ Y^{N_2}_{k_2}(\Theta_2 \phi_2)\ , \qquad \text{IV,1}$$

wobei die gesamte Zeitabhängigkeit in folgendem Störungsfaktor zusammengefaßt wird:

$$G^{N_1 N_2}_{k_1 k_2}(t) = (-1)^{2I+m_a+m_b}\left[(2k_1+1)(2k_2+1)\right]^{1/2}$$

$$\begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m'_a & -m_a & N_1 \end{pmatrix}\begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m'_b & -m_b & N_2 \end{pmatrix} \cdot \langle m_b|\Lambda(t)|m_a\rangle\langle m'_b|\Lambda(t)|m'_a\rangle^* \ . \qquad \text{IV,2}$$

In dieser Funktion sind die $A_{k_1}(1)$ bzw. $A_{k_2}(2)$ Ausrichtungs- bzw. Übergangskoeffizienten, die im Gegensatz zur γ-Strahlung für Kernreaktionen nur in einigen Sonderfällen angegeben werden können (Fer65). Die Zeitabhängigkeit der Korrelationsfunktion rührt von der zeitlichen Entwicklung der Kerne im isomeren Zwischenzustand $|I, m_a\rangle$ her, die durch den Entwicklungsoperator $\Lambda(t)$ beschrieben wird.

$\Lambda(t)$ genügt der Schrödingergleichung

$$\frac{\partial}{\partial t}\Lambda(t) = \frac{i}{\hbar} K \cdot \Lambda(t), \qquad \text{IV,3}$$

wobei K der Hamiltonoperator der Wechselwirkung zwischen dem isomeren Kern und dem wirksamen extranuklearen Störungsfeld ist.

Die generelle Form IV,1 der Korrelationsfunktion kann dazu benutzt werden, die Winkelkorrelation für verschiedene Störungen auszurechnen (dabei ist die Quantisierungsachse noch frei wählbar).

IV.2 Spezielle Winkelkorrelationsfunktionen

IV.2.1 Störungsfaktor für statische und axialsymmetrische Felder

Wenn die Störung der Winkelkorrelationsfunktion durch statische externe Felder hervorgerufen wird, kann man die Eigenvektoren und Eigenwerte von $\Lambda(t)$ leicht im $|m\rangle$-System ausdrücken:

$$\langle m_b|\Lambda(t)|m_a\rangle = \sum_n \langle n|m_b\rangle^* e^{-(i/\hbar)E_n t} \langle n|m_a\rangle \quad . \qquad \text{IV,4}$$

Hierbei sind $\langle m|n\rangle = U_{mn}$ die Matrixelemente einer unitären Matrix U, welche den Wechselwirkungsoperator K diagonalisiert

$$U\,K\,U^{-1} = E, \qquad \text{IV, 5}$$

mit E als diagonaler Matrix mit den Energiewerten E_n als Elementen.

Der Störungsfaktor nimmt dann folgende Form an:

$$G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) = \sum_{\substack{m_a m_b \\ nn'}} (-1)^{2I+m_a+m_b} \left[(2k_1+1)(2k_2+1)\right]^{1/2} \exp\left[(-i/\hbar)(E_n - E_{n'})t\right] \cdot$$

$$\cdot \langle n|m_b\rangle^* \langle n|m_a\rangle \langle n'|m_b'\rangle \langle n'|m_a'\rangle^* \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m_a' & -m_a & N_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m_b' & -m_a & N_2 \end{pmatrix}. \qquad \text{IV,6}$$

Ist die Wechselwirkung weiterhin axialsymmetrisch, so vereinfacht sich der Störungsfaktor weiter, wenn man die Quantisierungsachse in die Richtung der Symmetrie legt:

$$G^{N\,N}_{k_1 k_2}(t) = \sum_m \left[(2k_1+1)(2k_2+1)\right]^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m'-m & N & \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m'-m & N & \end{pmatrix}$$

$$\cdot \exp\left[-(i/\hbar)(E_m - E_{m'})t\right] . \qquad \text{IV,7}$$

IV.2.2 Störungsfaktor für die magnetische Wechselwirkung

Für ein rein statisches Magnetfeld H, das die Unterniveaus gemäß der Beziehung

$$E_m - E_{m'} = -Ng\mu_N H \qquad \text{IV,8}$$

äquidistant aufspaltet, nimmt der Störungsfaktor unter Ausnutzung der Orthogonalitätsbeziehung der 3j-Symbole folgende einfache Form an:

$$G^{NN}_{kk}(t) = e^{iN\omega_L t} , \qquad \text{IV,9}$$

wobei $\omega_L = (g\mu_k H)/\hbar$ die Larmorfrequenz ist. IV,10

Liegt das Magnetfeld senkrecht zur Ebene, die durch die Teilchenstrahlrichtung $\vec{k}_1$ und die Detektorrichtung $\vec{k}_2$ aufgespannt wird, so vereinfacht sich die Korrelationsfunktion zu

$$W_\perp(\theta,t,H) = \sum_{\substack{k=0 \\ \text{gerade}}}^{k_{max}} A_k(1)\, A_k(2)\, P_k\left[\cos(\theta-\omega_L t)\right] . \qquad \text{IV,11}$$

(θ ist der Winkel zwischen den beiden Richtungen).

In einem polykristallinen Magneten ist die Magnetfeldrichtung willkürlich orientiert. In diesem Fall muß man über alle Winkelrichtungen mitteln, die H bezüglich der $\vec{k}_1$-$\vec{k}_2$-Ebene einnehmen kann. Für den Störungsfaktor erhält man dann (MatR65):

$$G_{kk}(t) = (2k+1)^{-1} \sum_N G^{NN}_{kk}(t) = (2k+1)^{-1} \sum_N \cos(N\omega_L t) , \qquad \text{IV,12}$$

was zu folgender Korrelationsfunktion führt:

$$W(\theta,t,H) = (4\pi)^{-1}\sum_k A_k(1)\ A_k(2)\ \left[(2k+1)^{-1}\sum_N \cos(N\omega_L \cdot t)\right] P_k(\cos\theta).$$

IV,13

Hält man den Ferromagneten nicht auf einer Temperatur T_o fest, sondern erlaubt ihm, um T_o eine gewisse Temperaturverteilung anzunehmen, so wird sich dieses Verhalten in einer Verteilung des Magnetfeldes und damit einer Verteilung der Wechselwirkungsfrequenzen um den Wert ω_o äußern. Das führt zu einer Dämpfung der Störamplituden, die man durch die Einführung eines zeitabhängigen Dämpfungsfaktors $R_N(t)$ in die Korrelationsfunktion berücksichtigt:

$$W(\theta,t,H_R) = (4\pi)^{-1}\sum_k A_k(1)\ A_k(2)\ \left[(2k+1)^{-1}\right.$$

$$\left.\sum_N \cos(N\omega_L t)\ R_N(t)\right] P_k(\cos\theta), \qquad \text{IV,14}$$

Die Dämpfungsfaktoren für verschiedene Temperaturverteilungen sollen erst im Kapitel VII angegeben werden.

IV.2.3 Störungsfaktor für statische kombinierte Wechselwirkung

Den Hamiltonoperator für eine kombinierte Wechselwirkung im Festkörper kann man als Summe der magnetischen Wechselwirkung und der Quadrupolwechselwirkung ansetzen (BosK70):

$$K = K^{mag} + K^{el}. \qquad \text{IV,15}$$

Im allgemeinen haben die magnetische und die elektrische Wechselwirkung verschiedene Richtungen, so daß zwei verschiedene Koordinatensysteme notwendig sind, in denen jeweils getrennt die Energieeigenwerte berechnet werden müssen. Im System S der Quadrupolwechselwirkung erhält man nach einfachen Rechnungen für einen axialsymmetrischen Feldgradienten die Matrixelemente

$$H^{el}_{mm} = \hbar\omega_E\ (3m^2 - I(I+1)) \quad \text{(BosK70, FraS64)}, \qquad \text{IV,16}$$

wobei ω_E als elektrische Wechselwirkungsfrequenz bekannterweise definiert ist als

$$\omega_E = \frac{e\,Q\,V_{zz}}{\hbar\,4\,I\,(2I-1)} \qquad \text{IV,17}$$

Die magnetische Wechselwirkung hat in ihrem System S' eine einfachere Form (Gleichung IV,8), deshalb überführt man sie zweckmäßigerweise durch eine Drehung um die Eulerschen Winkel in das S-System. Die Rechnungen von Boström et al. (BosK70) zeigen, daß die Eigenwerte des Operators für die kombinierte Wechselwirkung dann nur noch vom relativen Winkel β_o zwischen der magnetischen und der elektrischen Feldachse abhängen.

Der Störfaktor, den man für eine polykristalline Probe nach der Integration über alle Raumwinkel berechnet, ist mit dem Faktor der Gleichung IV,6 identisch. Die Elemente der Eigenvektoren $u_{mn}(\beta_o)$ gewinnt man dabei numerisch aus der Diagonalisierung.

IV.2.4 Störungsfaktor für fluktuierende Felder

Eine übersichtliche Notation zur Berechnung von Störungsfaktoren hat Gabriel (Gab69) eingeführt. Er definiert einen Liouville-Raum, der durch normalisierte sphärische Tensoroperatoren aufgespannt wird. In diesem Raum wird der Störungsfaktor $G^{N_1N_2}_{k_1k_2}(t)$ ein Matrixelement eines zeitabhängigen Superoperators:

$$G^{N_1N_2}_{k_1k_2}(t) = \left(U^{(k_2)}_{N_2} \middle|\, \hat{\Omega}(t) \,\middle|\, U^{(k_1)}_{N_1}\right) . \qquad \text{IV,18}$$

Für rein magnetische Wechselwirkung mit Relaxationserscheinungen, die durch magnetische Fluktuationen hervorgerufen werden, erhält man mit Hilfe dieses Formalismus folgenden Störungsfaktor:

$$G^{qq}_{kk}(t) = \exp(-itq\omega_L - \lambda_{kq}\,t)\ ,\ t > 0 \quad \text{(GabB71)}. \qquad \text{IV,19}$$

Dabei ist ω_L die Larmorfrequenz des statischen Magnetfeldes. Der Dämpfungsfaktor λ_{kq} ist mit den longitudinalen und transversalen Spin-Gitter-Relaxationszeiten T_1 und T_2 verknüpft:

$$\lambda_{kq} = k(k+1)/2T_1 + q^2 \cdot (1/T_2 - 1/T_1) \; . \qquad \text{IV,20}$$

Damit unterscheidet sich der Dämpfungsfaktor von der Theorie von Abragam und Pound (AbrP53), wenn die beiden Relaxationszeiten nicht gleich sind ($T_1 \neq T_2$). Diese Bedingung ist bei den Messungen unterhalb des Curiepunktes erfüllt.

Für den einfachen Fall der isotropen Hyperfeinwechselwirkung, $H_{hf} = -\gamma \cdot A \cdot I \cdot J$ (J: Drehimpulsoperator der Elektronen) findet Gabriel folgende Abschätzungen für die einzelnen Korrelationszeiten an Hand der Korrelationsfunktion $\Delta\underline{J} = \underline{J} - \langle\underline{J}\rangle_R$ (Gab74):

$$1) \quad \frac{1}{T_2} - \frac{1}{2T_1} = \gamma^2 A^2 1/2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} dt \; e^{i\omega t} \langle 1/2 [\Delta J_z(t), \Delta J_z(0)]_+ \rangle_R \sim$$

$$\sim \frac{A^2 \cdot \tau_c}{1+(\omega_L \tau_c)^2} \sim A^2 \tau_c \; , \qquad \text{IV,21}$$

$$2) \quad \frac{1}{T_1} = \gamma^2 A^2 1/2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} dt \; e^{-i\omega t} \langle 1/2 [\Delta J_+(t), \Delta J_-(0)]_+ \rangle_R \sim$$

$$\sim \frac{A^2 \cdot \tau_c}{1+(\omega_{el}-\omega_L)^2 \tau_c^2} \ll \frac{1}{T_2} - \frac{1}{2T_1} \; , \qquad \text{IV,22}$$

da die Larmorfrequenz der Elektronen ω_{el} viel größer ist als die Kernlarmorfrequenz. Aus diesen beiden Gleichungen folgt: $T_2 \ll T_1$. Somit bleibt nur ein von q^2 abhängiger Dämpfungsfaktor übrig.

Zu betonen ist noch, daß diese Beziehungen unter den folgenden Bedingungen abgeleitet worden sind:

1. reine magnetische Wechselwirkung,
2. Hochtemperatur-Näherung: $h\omega_L \ll kT$.

Außerdem ist die Korrelationszeit des Elektrons viel kürzer als irgendeine andere Zeit: $\tau_c \ll (\tau_N, \omega_L^{-1}, T_1, T_2)$.

V Bedingungen für die Messungen mit den Sondenkernen ^{63}Ni, ^{66}Cu und ^{67}Zn

V.1 Einfluß der kernphysikalischen Eigenschaften der Sondenkerne auf die Meßgenauigkeit

Bei der Auswahl der Sondenkerne sind folgende Überlegungen zu berücksichtigen:

1. Das isomere Niveau des Sondenkerns muß von einem Isotop der Targetsubstanz durch eine Kernreaktion ausreichend stark angeregt werden. Außerdem sollte die Winkelverteilung der γ-Quanten des nachfolgenden Zerfalls eine große Anisotropie haben.
2. Die γ-Linien der Kernübergänge sollten nicht von Störlinien überdeckt sein.
3. Das Quadrupolmoment Q des Kerns sollte klein sein, damit sich der Einfluß von störstelleninduzierten Feldgradienten wenig auswirkt.
4. Je größer das Produkt aus Lebensdauer τ und g-Faktor g des isomeren Zustandes ist, desto genauer können im Prinzip kleine Magnetfelder bestimmt werden.
5. Wenn das Produkt $g \cdot \tau \cdot B_o$ zu klein wird (B_o ist das innere Feld am Sondenkern bei O K), werden Messungen für kleine Werte von $|\varepsilon|$ erschwert.

Zu den einzelnen Punkten sollen einige nähere Erklärungen folgen.

Stehen an einem Beschleuniger nur niederenergetische leichte Ionen zur Verfügung, so bringen die energetischen Bedingungen der Kernreaktion (Q-Wert, Coulombwall) eine starke Beschränkung der experimentellen Möglichkeiten mit sich. Mit genügend großem Wirkungsquerschnitt bieten sich nur Reaktionen wie z.B. (p,n), (d,p), (α,n) und mit Einschränkungen (^{3}He,p) an.

Zusätzlich zur Anregungsenergie wird bei der Kernreaktion Drehimpuls übertragen, was gewöhnlich zu einer anisotropen Winkelverteilung der beim Zerfall des Zustandes beobachteten elektromagnetischen Strahlung führt. Die Größe der Anisotropie A, die sowohl von der Kernreaktion als auch von den Über-

gangskoeffizienten der γ-Strahlung (vgl. Yam67) abhängt, geht direkt in die Zählzeit ein. Karlsson et al. (KarW72) schätzen ab, daß bei Bestimmung einer Spinrotationsmodulation mit einem statistischen Fehler von 10% die Zählrate C_i in jedem Kanal der ganzen Länge einer Modulationsperiode größer sein sollte als $100/A^2$:

$$C_i \gtrsim \frac{100}{A^2} \quad . \qquad \text{V,1}$$

Dabei wird erwartet, daß die Breite des einzelnen Zeitkanals 1/20 der Periode nicht überschreitet.

Durch die auf das Target auftreffenden Teilchen wird neben dem isomeren Niveau zusätzlich eine Störstrahlung angeregt, die das Verhältnis zwischen echter Zählrate und Untergrund verschlechtert. Von Vorteil kann es sein, wenn die γ-Energie des Übergangs weit entfernt von prominenten Störlinien (Röntgenlinien des Targets, 511 keV-Vernichtungsstrahlung) liegt (z.B. beim ^{67}Zn) oder wenn aus der dem isomeren Niveau folgenden γ-Kaskade eine "frei stehende" Linie ausgewählt werden kann (^{66}Cu).

Weiterhin werden im Targetmaterial Störstellen erzeugt, deren Dichte vom Rückstoß des angeregten Targetkerns und damit von der Energie und der Art der benutzten Strahlteilchen beeinflußt wird. Die damit verbundenen elektrischen Feldgradienten greifen über das Quadrupolmoment Q des Kerns in die Spinrotationsmodulation ein und verursachen eine Dämpfung oder "Verzeichnung" (kombinierte Wechselwirkung) der Modulation. Die Stärke dieser Störung hängt sowohl von der Größe des Quadrupolmoments als auch von den dynamischen Eigenschaften des Gitters ab.

Die Genauigkeit, mit der Magnetfeldmessungen nach der TDPAD-Methode durchgeführt werden können, erhöht sich mit wachsendem Verhältnis von Lebensdauer zu Larmorperiode. Allgemein wird vorgeschlagen (KarW72, Rib72, Mic70), daß die Larmorperiode T_L nicht länger sein soll als das zweifache der Lebensdauer:

$$T_L \leq 2\tau \qquad \text{V,2}$$

Daraus ergibt sich sofort die Beziehung:

$$\frac{2\pi\hbar}{g\mu_K B} \leq 2\tau \qquad \text{V,3}$$

oder die Beziehung:

$$B_{min} = \frac{\pi\hbar}{\mu_K} \frac{1}{g\cdot\tau} \quad , \qquad \text{V,4}$$

wobei B_{min} ein Maß für das kleinste noch meßbare Magnetfeld ist. Die Abbildung 1 zeigt die Abhängigkeit dieses Magnetfeldes vom Produkt $g\cdot\tau$.

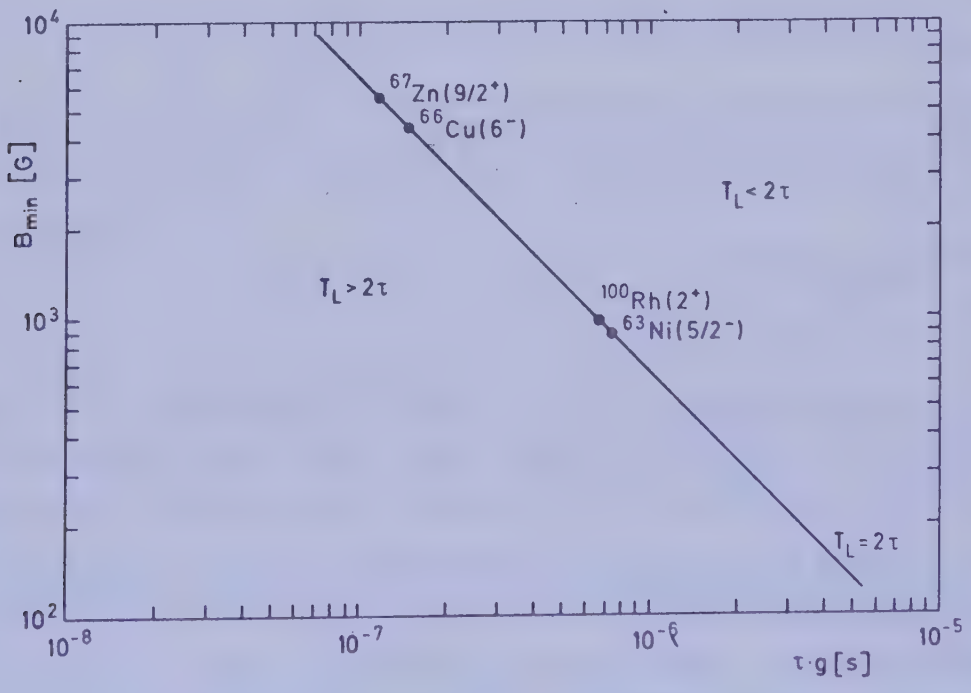


Abb. 1: Empfindlichkeit kernphysikalischer Sonden auf Magnetfelder
Die kernphysikalische Sonde wird durch die Lebensdauer τ und den g-Faktor g charakterisiert. Bei wachsendem Produkt $\tau\cdot g$ können geringere Magnetfelder B_{min} am Kernort gemessen werden. Die durchgezogene Linie ist für den Fall berechnet worden, daß eine volle Larmorperiode T_L der Spinrotationsmodulation genau zwei Lebensdauern lang ist. Zur Orientierung sind die in der Arbeit benutzten Sondenkerne und ^{100}Rh(2$^+$) eingezeichnet.

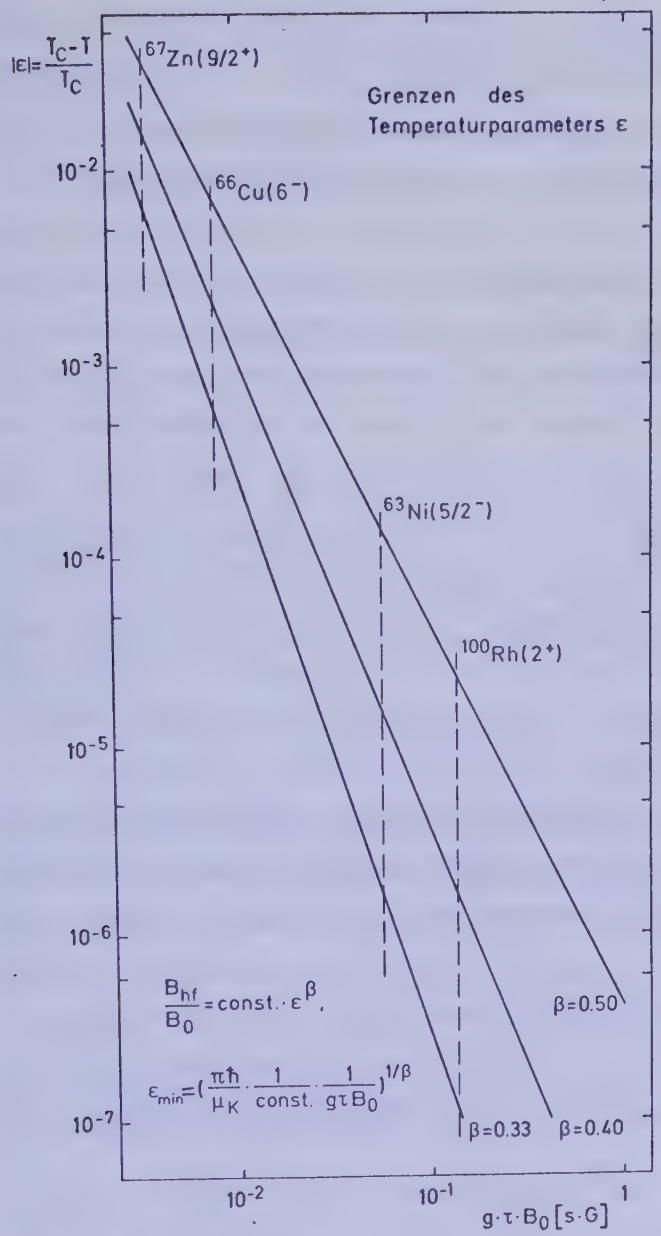


Abb. 2: Grenzen des Temperaturparameters $|\varepsilon|$

Für $T_L = 2\tau$ wird die Abhängigkeit des Temperaturparameters von den Kerneigenschaften (g,τ) und dem Hyperfeinfeld bei O K (B_o) durch die durchgezogene Linie dargestellt. Der kritische Exponent β tritt als Parameter auf. Der dichteste Abstand zum Curiepunkt kann für die in der Arbeit benutzten Sondenkerne $^{67}Zn(9/2^+)$, $^{66}Cu(6^-)$ und $^{63}Ni(5/2^-)$ direkt abgelesen werden. Zum Vergleich ist auch $^{100}Rh(2^+)$ eingezeichnet.

Den Einfluß des Hyperfeinfeldes bei O K (B_o) auf die Meßgenauigkeit am Curiepunkt des Nickel verdeutlicht die Abbildung 2. Hier ist der minimale Temperaturparameter $|\varepsilon|$, wie er sich aus B_{min} ergibt, als Funktion von $(\tau \cdot g \cdot B_o)$ doppelt logarithmisch dargestellt. Der Zusammenhang zwischen dem maximal erreichbaren $|\varepsilon|$ und $(\tau \cdot g \cdot B_o)$ ist dann durch eine lineare Beziehung mit dem als Steigungsparameter fungierenden kritischen Exponenten β gegeben.

V.2 Bedingungen für den Beschleunigerstrahl

Die TDPAD-Methode kann am gepulsten Beschleuniger nur dann angewendet werden, wenn der Teilchenstrahl folgende Bedingungen erfüllt:

1. Die Teilchenimpulse der einfallenden Strahlung werden mit einem Pulsabstand T_o wiederholt. Störende Überlagerungen der Intensitätsmodulation aus mehreren aufeinanderfolgenden Anregungen können nur dann vermieden werden, wenn der Pulsabstand T_o größer ist als einige ($\sim$7) Lebensdauern τ des zerfallenden Niveaus. Diese Bedingung wird im Experiment mit Hilfe eines elektrostatischen Pulsunterdrückers erfüllt (vgl. Kap. VI), der den Pulsabstand des Beschleunigers von 1 µs auf 2 µs und mehr heraufsetzt. Die stroboskopische Methode, die auch bei kleineren Pulsabständen ($T_o < \tau$) Messungen erlaubt (ChM70), kann in diesem Experiment nicht angewendet werden, da weder der Pulsabstand kontinuierlich variiert noch das am Kern angreifende Magnetfeld (das externe Feld ist null) frei gewählt werden können.
2. Die Pulse des Teilchenstrahls haben eine endliche Länge ΔT, die direkt in die Zeitauflösung der gesamten Apparatur eingeht. Die Pulsbreite ΔT muß kurz gegen die Modulationsperiode T_L sein.

V.3 Die Sondenkerne ^{63}Ni, ^{66}Cu und ^{67}Zn

V.3.1 Der $5/2^-$-Zustand im ^{63}Ni

In den Nickelisotopen sind zwei zur Untersuchung des Nickel geeignete isomere Niveaus bekannt. Davon scheidet das 67 keV-Mößbauerniveau im ^{61}Ni (ObeW61) zur Bestimmung von β aus, weil es nur eine kurze Lebensdauer von τ = 7.5 ns (Shi71) und einen kleinen g-Faktor von g = 0.17 (Shi71) hat. Als einziges Niveau bleibt somit der erste angeregte Zustand des ^{63}Ni übrig.

Dieser $5/2^-$-Zustand im ^{63}Ni ist nur über eine Kernreaktion zu erreichen - etwa einer Reaktion $^{62}Ni(d,p)^{63}Ni$ mit Deuteronen einer Energie zwischen 5.8 und 6.2 MeV. Er zerfällt mit einer Lebensdauer von τ = 2.49(5) µs über eine etwas beschleunigte E2-Strahlung (E = 87.2(4) keV) in den $1/2^-$-Grundzustand (Ble70, BleM70, BleM71). Die γ-Energie ist noch weit genug entfernt von der Röntgenlinie des Tantal (E = 67.4 keV), das als Targetblende dient. Der g-Faktor ist 0.301(1).

Die Angabe für das innere Feld bei O K wird Kernresonanzuntersuchungen entnommen, die an magnetisiertem Nickel von 4.2 K bis 536 K vorgenommen wurden (StrB63). Aus ihnen ergibt sich ein am Kernort wirksames Feld von der Größe

$$B_o(4.2) = -74.8(7)\ kG,$$

das mit Hilfe der Brillouinkurve auf O K extrapoliert werden kann. Das negative Vorzeichen, bezogen auf die Richtung der Magnetisierung, wird durch die Messung von Bleck et al. (Ble70, BleM71) am System $^{63}Ni_{(5/2^-)}\underline{Ni}$ bestätigt.

V.3.2 Der 6^--Zustand im ^{66}Cu

In den geraden Kupferisotopen ^{62}Cu, ^{64}Cu und ^{66}Cu sind vier isomere Niveaus bekannt (Rib72, BleB72, BleB73), von denen für eine Anwendung bei unseren Messungen aber nur der 6^--Zustand im ^{66}Cu in Frage kommt (vgl. Tab. 6).

Neben der bis dahin bekannten $^{65}Cu(d,p)^{66}Cu$-Reaktion ist dieses Niveau auch über eine $^{64}Ni(^3He,p)^{66}Cu$-Reaktion zu erreichen (Teilchenenergie: 13 MeV). Leider hat die $^{64}Ni(^3He,p)^{66}Cu$-Reaktion in Konkurrenz zu anderen ^3He-Reaktionen keinen großen Wirkungsquerschnitt, so daß eine große Anzahl von Störlinien im γ-Spektrum auftauchen, von denen die überaus starke 511 keV-Vernichtungsstrahlung mit ihrem Comptonberg die größten Schwierigkeiten bringt. Obwohl die Anisotropie der γ-Strahlung (der 186 keV-Linie) $\sim$ 8% be-

trägt, erfordern die Messungen für jedes Spinrotationsspektrum aus den oben genannten Gründen eine so lange Zählzeit, daß die Ergebnisse auch nach ca. 12 Stunden noch nicht die hohe Genauigkeit liefern, die bei den anderen Sonden erreicht werden kann.

Die Abbildung 3 zeigt das Niveauschema des ^{66}Cu. Der 6^--Zustand liegt bei einer Energie von 1154 keV und zerfällt mit einer Lebensdauer von τ = 860(30) ns über eine 6^-(M2)4^+(M1)3^+(M1) 2^+(M1) 1^+-Kaskade mit nur wenig E3-Beimischung, ohne sich auf andere Niveaus als diese zu verzweigen.

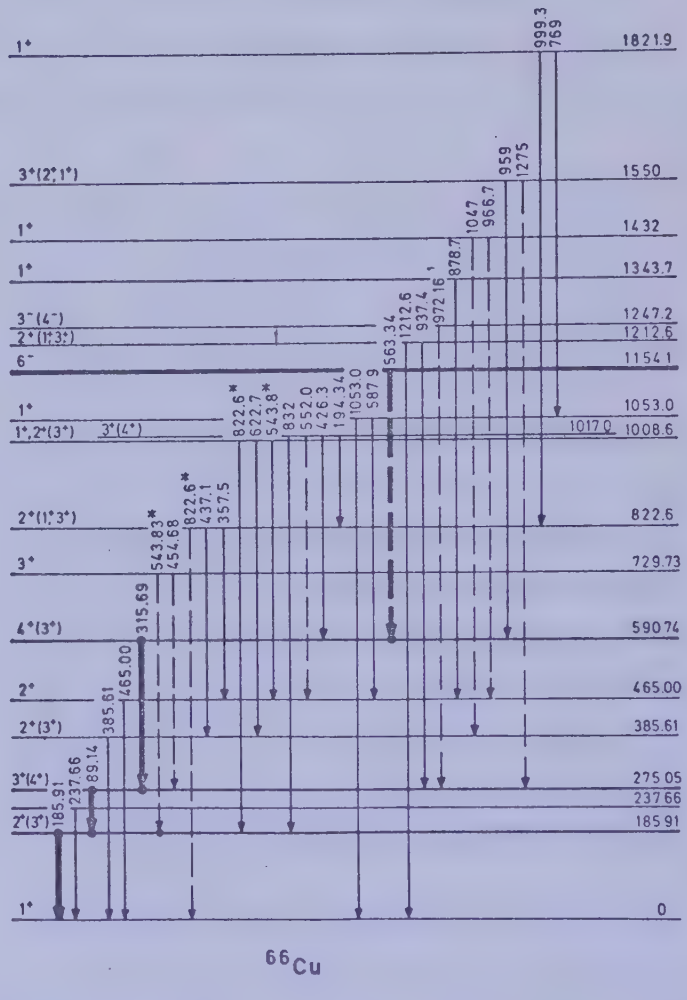


Abb. 3: Niveauschema für ^{66}Cu (aus BleB72).

Die Anisotropie für den 316 keV-Übergang beträgt nur noch ungefähr 75% des 563 keV-Übergangs; für die beiden folgenden Übergänge bleibt die Anisotropie konstant (Rib72). Weil der 563 keV-Übergang im NaJ-Detektor nicht von der 511 keV-Linie getrennt werden konnte, wurde nur an den tieferliegenden γ-Übergängen gemessen.

Der g-Faktor beträgt g = 0.1733(5). Das daraus berechnete Produkt $\tau \cdot g$ ist kleiner als das von ^{63}Ni, reicht aber ebenso wie das von ^{67}Zn für unsere Messungen aus (vgl. Abb. 2).

Das Hyperfeinfeld für Kupfer in einem Nickelgitter ist von Asayama (Asa63) und Bancroft (Ban70) durch NMR-Messungen bestimmt worden. Für eine 2at% Cu - 98at% Ni-Legierung erhält Bancroft bei einer Temperatur von 4.2 K ein Hyperfeinfeld von $B_o(4.2K) = -49.2$ kG. Daraus ergibt sich für extrem verdünnte Lösungen von Kupfer in Nickel

$$B_o(4.2) = -51.1 \text{ kG.}$$

V.3.3 Der $9/2^+$-Zustand im ^{67}Zn

Das $9/2^+$-Niveau im ^{67}Zn, das über die Kernreaktion $^{64}Ni(\alpha,n)^{67}Zn$ mit Hilfe von 13 MeV α-Teilchen im Nickel direkt erzeugt wird, zeigt mit etwa 20% eine große Anisotropie der γ-Winkelverteilung. Da die Energie der Zerfalls-γ-Quanten vom $9/2^+$-Zustand in den $5/2^-$-Grundzustand außerdem bei 605 keV oberhalb störender Untergrundlinien liegt, eignet sich dieses Niveau sehr gut zu festkörperphysikalischen Untersuchungen.

Zusätzlich zum A2-Term wurde ein A4-Term von 5.2% mit zur A2-Ausrichtung negativem Anfangswert gefunden. Aus dem Verhältnis der beiden dazugehörigen Anisotropiekoeffizienten ergibt sich (BerL73) eine obere Grenze der E3-Beimischung zu diesem Übergang von $(E3/M2) = 10^{-4}$. Das steht im Einklang mit der Lebensdauer dieses Niveaus von

$$\tau = 480(20) \text{ ns} .$$

Theoretische Voraussagen des Rumpfpolarisationsmodells (NoyA58) für die Quadrupolmomente der $9/2^+$-Zustände im Zink liefern Werte um +0.2b. Das Quadrupolmoment des ^{67}Zn sollte davon nicht wesentlich abweichen. Anders als bei den bisher beschriebenen Sondenkernen, deren Quadrupolmoment als wesentlich kleiner abgeschätzt wird, ist damit ^{67}Zn als Sonde im Festkörper sehr empfindlich auf Targetverunreinigungen und Fehlstellen.

Der g-Faktor des $9/2^+$-Zustandes im ^{67}Zn wurde bestimmt zu

$$g = -0.243(2) \qquad \text{(BerL73)}$$

Das Hyperfeinfeld für Zink in Nickel ist

$$B(4.2) = -29.6(3)\ kG \qquad \text{(BerH74)}.$$

Eine Zusammenstellung der zur Diskussion stehenden Sondenkerne und ihrer Eigenschaften erfolgt in Tabelle 6.

Tabelle 6: Kernphysikalische Daten und Hyperfeinfelder bei 0 K für verschiedene Sondenkerne

Niveau	Reaktion	γ-Linien |keV|	τ	g	$\|B_o\|$ |kG|	τg $\|10^{-9}$ s|	$\tau g B_o$	Literatur
$^{63}Ni,5/2^-$	$^{62}Ni(d,p)$	87.2(4)	2.49(5)µs	+0.301(1)	74.8(7)	749	56000	Ble70 BleM70 BleM71
$^{61}Ni,5/2^-$	--	67	7.5 ns			1	95	ObeW61 Shi71
$^{66}Cu,6^-$	$^{65}Cu(d,p)$ $^{64}Ni(^3He,p)$	563.34(50) 315.69(50) 89.14(50) 185.91(50)	860(30)ns	+0.1733(5)	51.1	149	7600	BleB72 Rib72
$^{64}Cu,6^-$	$^{63}Cu(d,p)$ $^{64}Ni(p,n)$	1019.21(50) 212.36(50) 202.89(50) 159.25(50)	29.5(10)ns	+0.176(5)		5	265	BleB72 Rib72
$^{62}Cu,2^+$	$^{62}Ni(p,n)$	40.88	6.7(2)ns	+0.661(12)		4	226	BleB73 Rib72
$^{62}Cu,3^+$	$^{62}Ni(p,n)$ $^{61}Ni(d,p)$ $^{59}Co(\alpha,n)$	390.18	16.0(3)ns	+0.667(4)		11	545	BleB73 Rib72
$^{67}Zn,9/2^+$	$^{64}Ni(\alpha,n)$	605	480(20)ns	-0.243(2)	29.6(3)	117	3450	BerL73 BerH74
$^{100}Rh,2^+$	--	(84.0) 74.8	309.5(3.0)ns	2.141(15)	207	663	13700	Ren70
$^{57}Fe,3/2^-$	--	14.4	14.0 ns	-0.1032	283(1)	1	409	BenR72 Gum70
$^{181}Ta,5/2^+$	--	82	15.6(3)ns	1.31(5)	98(2)	20	2000	Shi71 KosS71
$^{111}Cd,5/2^+$	--	247	121.3(8)ns	-0.318(2)	68.6(15)	39	2650	KosS71

VI Versuchsaufbau

VI.1 Teilchenstrahl

Für die Experimente stand der 7 MV Van-de-Graaff-Beschleuniger[+)] des Hahn-Meitner-Institutes zur Verfügung, mit dem sich nach Einbau eines Gasstrippers in die Beschleunigungsstrecke α- und ^{3}He-Teilchen einer Energie von ungefähr 12 MeV erzeugen ließen. Der Pulsabstand der 7 - 10 ns langen Strahlpulse konnte mit Hilfe eines elektrostatischen Strahlpulsunterdrückers (Mah70) von ursprünglich 1 µs auf 2 µs und mehr heraufgesetzt werden. Schließlich wurde der Strahl mit Quadrupollinsen und einigen Blenden so auf das Target fokussiert, daß die integrale Strahlintensität auf dem 3 mm^2 großen Brennfleck nicht größer als 20 nA war. Diese Beschränkung war wegen der Temperaturstabilität am Target , zur Vermeidung von Energieinstabilitäten im Detektor und zur Verringerung der Strahlungsschäden nötig. Die experimentellen Daten des Strahles können der Tabelle 7 entnommen werden.

Tabelle 7: Experimentelle Einzelheiten des Teilchenstrahls

Experiment	Reaktion	Teilchensorte	Teilchenenergie	Pulsstand	Stromintensität
Ni in Ni	^{62}Ni(d,p)^{63}Ni	d	6.2 MeV 5.8 MeV	8 µs	< 15 nA
Cu in Ni	^{64}Ni(τ,p)^{66}Cu	τ^{++}	12 MeV	4 µs	< 20 nA
Zn in Ni	^{64}Ni(α,n)^{67}Zn	α^{++}	11.8 MeV	4 µs	< 20 nA

+) Typ CN der Firma HVEC

VI.2 Target

Zur Herstellung der Targets wurden Nickelpulver benutzt, die auf 98.83% ^{62}Ni bzw. 97.93% ^{64}Ni angereichert waren. Die Elektronenstrahl-Mikroanalyse ergab, daß die Verunreinigung des Nickels durch einzelne Elemente in den meisten Fällen unter 1‰ lag. Nur ein Target (die ^{63}Ni-Probe Nr. 1) war so stark mit einer Reihe von Fremdstoffen (K, Ca, Na, Cl) verunreinigt, daß sie in den Nachweisbereich der Elektronenstrahl-Mikroanalyse gelangten +). Die Nickelpulver wurden unter Wasserstoffatmosphäre in Quarzröhrchen zu Kugeln von ca. 30 mg zusammengeschmolzen und anschließend zwischen Schutzblechen aus Nickel zu Scheiben von ungefähr 4 mm Durchmesser zusammengepreßt. Bevor das Target in den Elektronenstrahlofen eingebaut wurde, börtelte ein Uhrmacher in der Mitte der Nickelscheibe einen Nickelchrom-Draht ein, der als Thermoschenkel dienen sollte. Anschließend wurde das Target im Hochvakuum mittels des Elektronenstrahlofens sechs Stunden lang bei 600°C getempert.

VI.3 Targetanordnung und Heizung

Untersuchungen zur Bestimmung des Hyperfeinfeldes von ^{63}Ni in Nickel zeigten (Ble70), daß die Temperatur am Targetort während des Experimentes auch bei einer gut geregelten Widerstandsheizung um ungefähr 10°C schwankte. Der Grund für diese relativ große Temperaturinstabilität sind Änderungen der Beschleunigercharakteristik im Zeitbereich zwischen Millisekunden und Sekunden, die Schwankungen des Teilchenstrahles sowohl in der Intensität als auch in der Fokussierung hervorrufen. Eine Widerstandsheizung kann die Temperaturstabilität nicht erhöhen, da sie wegen der großen thermischen Masse und des schwachen Wärmekontaktes zwischen den Heizungsdrähten und der Probe immer große Wärmezeitkonstanten hat. Als Ausweg aus diesen Schwierigkeiten

+) Ich danke Herrn Dr. G. Malow, HMI, für die Durchführung der Analysen.

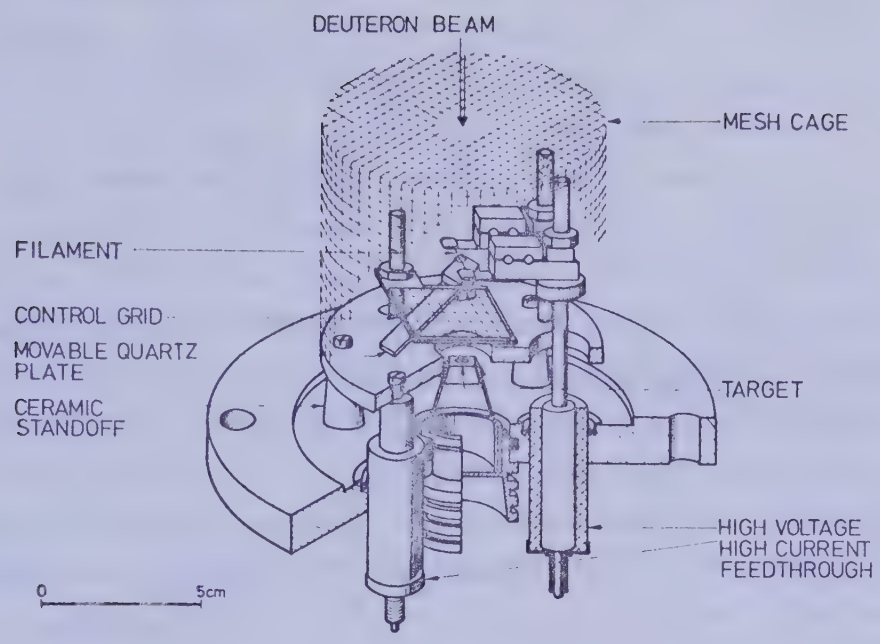


Abb. 4: Aufbau des Elektronenstrahlofens (aus BalB74)

bietet sich eine Elektronenstrahlheizung an, die eine Zeitkonstante von ungefähr 100 Millisekunden hat.

Die Abbildung 4 zeigt eine schematische Zeichnung des Elektronenstrahlofens, der auf einen 4''-Flansch aufgebaut ist. Die Stege der Targethalterung sind aus Titanblech gefertigt und mechanisch an die dünnwandige Aluminium-Endkappe gepreßt. Das Target wird durch einen Tantal-Ring an seinem Platz gehalten. Als Thermoelement werden Drähte aus Reinstnickel und Nickelchrom verwendet, die in der Mitte des Targets eingepreßt wurden, so daß die Meßstelle für die Temperatur dort liegt, wo der Nickelchromdraht das Target berührt. Zwei weitere Thermopaare helfen bei der Überwachung der Regelung und der Analyse des Teilchenstrahlprofiles. Die Thermopaare wurden vor der Messung separat gegen normale Thermometer geeicht und nach der Messung von der Firma Degussa, Hanau, mit einer absoluten Genauigkeit von $\pm 0.2^{\circ}C$ im interessanten Temperaturbereich noch einmal vermessen. Eine drehbare Quarzplatte macht den Beschleunigerstrahl während der Fokussierungsarbeiten sichtbar.

Die Heizung des Targets erfolgt durch den Beschuß mit beschleunigten Elektronen. In unserer Anordnung wird dazu das Target geerdet, während an die gesamte Elektronenkanone eine negative Spannung von 2500 Volt gelegt wird. Die Elektronen werden aus einem 10 cm langen und 0.5 mm starken bifilar gewickelten Draht emittiert, der bei einer Temperatur von 1400°C einen Emissionsstrom von 2 mA liefert. Das reicht aus, um das Target auf 600°C aufzuheizen. Der Emissionsdraht besteht aus thoriertem Wolfram, das sorgfältig karburiert wurde, um eine gegenüber reinem Wolfram höhere spezifische Elektronenemission zu erreichen. Drähte aus reinem Wolfram müssen für die gleiche Elektronenemission höher aufgeheizt werden. Entsprechend traten bei den ersten Messungen mit einfachen Wolframdrähten Schwierigkeiten auf, weil sich auf dem Target Wolframdampf in einer dünnen Schicht ablagerte. Der Drahtkäfig um die Elektronenkanone, der ebenfalls auf Hochspannung liegt, soll die Elektronen auf das Target fokussieren und von den Ofenwänden fernhalten.

VI.4 Temperaturregelung[+)]

Die gesamte Temperaturregelung arbeitet nach dem Prinzip einer Triode. Die Temperatur wird dabei durch ein Rückkopplungssignal vom Thermoelement zu einem Tantal-Maschengitter, das den Anodenstrom reguliert, stabil gehalten. Ein Blockdiagramm der gesamten Regelelektronik ist in Abbildung 5 zu sehen. Der Temperaturregler RT16 verstärkt die Thermospannung und vergleicht sie mit einer eingebauten stabilen Referenzspannung. Die Differenz wird in einer Schaltung mit proportionalen, integralen und differentialen Elementen eingespeist (P-I-D-Regler). Der DC-DC-Wandler V17 leitet das Signal auf das Gitter weiter, während er gleichzeitig den RT16 vor der negativen Hoch-

+) Die Regeltechnik wurde im HMI entwickelt (vgl. BalB74)

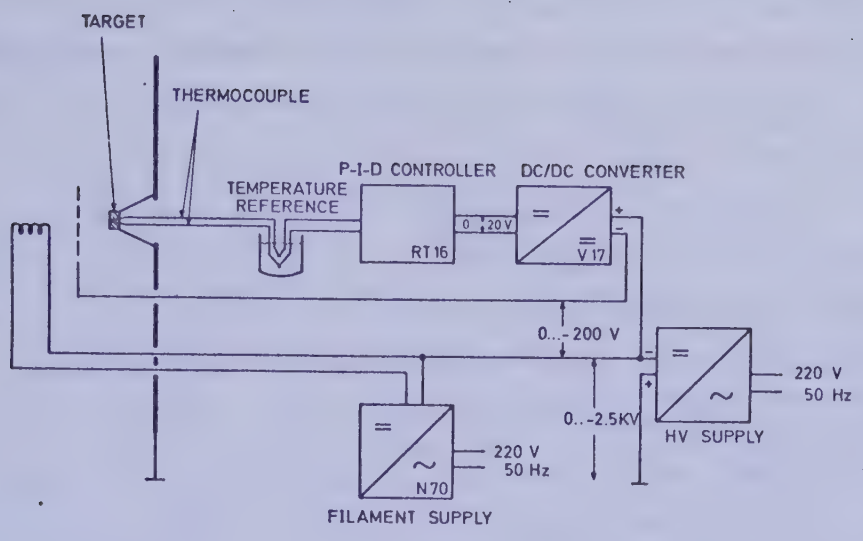


Abb. 5: Blockdiagramm der Elektronik der Temperaturreglung (aus BalB74)

spannung schützt. Die Stromversorgung für den Emissionsdraht,N70,liefert bei einer Spannung bis zu 5 V einen Strom von 20 A und ist bis zu 5 kV gegen das Erdpotential isoliert. Von Vorteil für die Teilchenstrahlfokussierung kann es sein, wenn man das Tantalgitter wegläßt. Bei solch einer Anordnung muß man die Beschleunigungsspannung für die Elektronen direkt in die Regelung einbeziehen. Das erfolgt in einer etwas abgewandelten Schaltung mit Hilfe eines regelbaren Hochspannungsgerätes. Als Referenzpunkt für das Thermoelement wurde der Eispunkt des Wassers gewählt, der bis auf 10^{-4} °C konstant gehalten wurde.

Für die letzten Messungen wurde diese Anordnung weiter verbessert, da die interne Referenzspannung des RT16 geringen Langzeitschwankungen unterlag. Deshalb wurde die Thermospannung außerhalb des RT16 mit einer auf 10^{-5} V stabilen Spannungsquelle verglichen. Um die Genauigkeit noch weiter zu erhöhen, wurde die "Sampling-Methode" nutzbar gemacht. Bei dieser Methode wird in einer zweidimensionalen On-Line-Messung jedem akzeptierten γ-Ereignis des Detektors gleichzeitig eine Temperatur zugeordnet.

VI.5 Geometrischer Aufbau, Detektoren und Elektronik

Wegen des Geometriefaktors in der Gleichung IV,13 wurden beide zur Verfügung stehenden Detektoren unter 180° und 90° zur Richtung des Teilchenstrahles aufgestellt. Als Detektoren wurden auf Multiplier aufgeklebte NaJ(Tl)-Scintillationskristalle benutzt. μ-Metallzylinder schirmten magnetische Streufelder und das Erdfeld ab. Die Größe der NaJ-Kristalle wurde der Energie der zu messenden γ-Strahlung angepaßt: Kristalle von 2 mm × 38 mm Ø wiesen die 87 keV-Strahlung des ^{63}Ni nach, während die 605 keV-Strahlung des ^{67}Zn mit 50 mm × 38 mm Ø Kristallen gemessen wurde. Für das ^{66}Cu wurden ebenfalls Kristalle von 50 mm × 38 mm Ø benutzt, weil die Spinrotationsmessungen an sämtlichen verzögerten Linien durchgeführt werden sollten. Mehrere Gold- und Kupferfolien vor den Detektoren absorbierten einen Teil der stark angeregten Röntgenstrahlung des Targets.

Die elektronische Apparatur stimmte im Prinzip mit der bei Bleck et al. (BleH69, BleM70) ausführlich beschriebenen Anordnung überein. Grundlegende Änderungen wurden nur im Startkreis des Zeit-Amplituden-Wandlers vorgenommen.

Das Startsignal für den Zeit-Amplituden-Wandler (TPC) wurde von einem im Strahlrohr justierten Influenzröhrchen (Pick up) geliefert, das durch ein Nulldurchgangssignal den Zeitpunkt des Teilchenstrahldurchfluges anzeigte. Da dieses Röhrchen in dem Strahlrohrteil des Beschleunigers angebracht war, wo die verschiedenen Ladungszustände der Heliumkerne noch nicht getrennt waren, mußten die Pick-up-Signale dieser beiden Zustände in einer elektronischen Koinzidenz- und Filterschaltung auseinandersortiert werden. Weiterhin sollte der TPC nur dann eine Messung durchführen, wenn während eines Strahlimpulsintervalles keine prompte γ-Strahlung nachgewiesen wurde. Damit vermied man in den Lebensdauerspektren die Auswirkungen von Totzeiteffekten, die im analogen Teil der Elektronik auftreten können, weil zum Zeitpunkt des Auftreffens des Teilchenstrahles auf das

Target sehr viel Röntgen- und Gammastrahlung erzeugt wird. Eine einfache Antikoinzidenz, die im Bereich von 50 ns um den Promptpeak gesetzt wird, reichte zu diesem Zweck aus.

Die Signale der im NaJ(Tl)-Kristall nachgewiesenen γ-Quanten wurden in einer Langsam-Schnell-Anordnung in energiediskriminierte Zeitsignale umgewandelt und gelangten dann auf den Stop-Eingang des TPC. Das Spektrum der Ausgangssignale des TPC wurde über Analog-Digital-Wandler (ADC) in die Speicher von Vielkanalanalysatoren oder direkt in einen Prozeßrechner (PDP15 der Firma DEC, Mass.) gegeben. Zur zusätzlichen Überwachung der Temperatur wurde der Meßvorgang am ADC unterbrochen, sobald der Temperaturregler RT16 meldete, daß die vorgegebenen Toleranzgrenzen der Temperatur überschritten waren.

VII Durchführung der Messung und Ergebnisse

VII.1 Kernreaktion, Eindringtiefe und Rückstoß

Um die im Kapitel V vorgestellten Sondenkerne zu erzeugen, muß man von unterschiedlichen Nickelisotopen ausgehen: Für die ^{66}Cu- und die ^{67}Zn-Messungen ist dasselbe ^{64}Ni-Target benutzt worden,; die beiden ^{63}Ni-Messungen sind an verschiedenen Targets aus verschiedenen Isotopensendungen durchgeführt worden.

Die Einschußenergien, die für die Deuteronen bei 5.8 MeV und 6.2 MeV, für die ^{3}He-Kerne bei 11.8 MeV und für die α-Teilchen bei 12.0 MeV lagen, reichen zur Kernreaktion aus. Weiterhin sind für die dynamischen Verhältnisse die in der Tabelle 8 verzeichneten Abschätzungen gemacht worden, um zu prüfen, innerhalb welchen Volumens im Target die Sondenkerne zur Ruhe kamen. Es werden die Einschußteilchen bekanntlich auf ihrem Weg durch den Kristall abgebremst und erreichen schließlich Energien, bei der keine Kernreaktionen mehr möglich sind. Da keine Anregungsfunktionen vorliegen, soll die Strecke als Eindringtiefe des Strahles bezeichnet werden, die die Teilchen zwischen der Kristalloberfläche und der Tiefe im Kristall zurückgelegt haben , bis zu der sie 10% ihrer Anfangsenergie verloren haben. Sie liegt für Deuteronen von 6.2 MeV bei $1.5 \cdot 10^{-3}$ cm, für ^{3}He-Teilchen von 12.0 MeV bei $3.8 \cdot 10^{-3}$ cm und für α-Teilchen von 11.8 MeV bei $6.7 \cdot 10^{-3}$ cm (WilB62). Innerhalb dieser Strecke sollte ein großer Teil der Kernreaktionen stattfinden. Der Sondenkern erhält durch die Kernreaktion einen Rückstoß, der ihn bis zu über 1000 Atomlagen weiterfliegen lassen kann. Die Eindringtiefe durch den Rückstoß wird aus der Formel von Biersack (Bie66) abgeschätzt. Wie man aus Tabelle 8 sieht, ist das dotierte Volumen des Targets in jedem Fall größer als nur eine dünne Oberflächenschicht. Das ist wichtig, denn die Oberfläche kann durch Ablagerungen fremder Stoffe gestört sein, und außerdem haben

Oberflächen von Magneten vermutlich ein zum übrigen Magneten unterschiedliches Verhalten (Ben73).

Sondenkern	Kernreaktion	Energie des eingeschossenen Teilchens [MeV]	Q-Wert der Kernreaktion	Rückstoßenergie des Sondenkerns [keV]	Winkel θ	Eindringtiefe durch Rückstoß [cm]	Eindringtiefe der Primärteilchen [cm]
$^{63}Ni(5/2^-)$	$^{62}Ni(d,p)$	5,8	+4.617	680	0°	$0.17\cdot10^{-4}$	$1.5\cdot10^{-3}$ (10%)
				603	19°	$0.16\cdot10^{-4}$	
				(21	71°)	$(0.11\cdot10^{-5})$	$3.0\cdot10^{-3}$ (20%)
		6.2		717	0°	$0.18\cdot10^{-4}$	$1.9\cdot10^{-3}$
				636	19°	$0.16\cdot10^{-4}$	
				(23	69°)	$(0.11\cdot10^{-5})$	$3.3\cdot10^{-3}$
$^{66}Cu(6^-)$	$^{64}Ni(^3He,p)$	12.0	+6.793	1540	0°	$0.33\cdot10^{-4}$	$3.8\cdot10^{-3}$
				1280	20°	$0.29\cdot10^{-4}$	
				(230	44°)	$(0.73\cdot10^{-5})$	$7.4\cdot10^{-3}$
$^{67}Zn(9/2^+)$	$^{64}Ni(\alpha,n)$	11.8	-4.879	1247	0°	$0.28\cdot10^{-4}$	$6.7\cdot10^{-3}$
				789	19°	$0.19\cdot10^{-4}$	
				(545	203°)	$(0.14\cdot10^{-4})$	$13.0\cdot10^{-3}$

Tabelle 8: Dynamische Verhältnisse bei den benutzten Kernreaktionen

Die Rückstoßenergie des Sondenkerns wird aus der Energie der eingeschossenen Teilchen und dem Q-Wert der Kernreaktion für verschiedene Winkel θ zwischen der Richtung des Primärstrahles und der des rückgestoßenen Sondenkerns berechnet. Daraus erhält man die Eindringtiefe des Sondenkerns in Nickel. Die Eindringtiefe der Primärteilchen, nachdem sie 10% (bzw. 20%) ihrer Anfangsenergie verloren haben, wird Tabellen entnommen (WilB62).

VII.2 Gitterplatz und Fehlstellen

Modellrechnungen von Erginsoy et al. (ErgV65), die den Abbremsprozeß der Rückstoßkerne beschreiben, und eine Reihe experimenteller Untersuchungen (Ble70, ChrR66, Waa74) lassen erwarten, daß die weitaus größte Zahl der rückgestossenen Sondenkerne auf regulären Gitterplätzen landet. Einen Anhaltspunkt für ein solches Verhalten kann die relative Lage von Gitteratom und Fremdatom im sogenannten Darken-

Gurry-Diagramm (DarG53) geben, in dem die Elemente entsprechend ihrem Atomradius und ihrer Elektronegativität in einer Fläche angeordnet sind. Kupfer liegt hier innerhalb der ersten Region um Nickel (Atomradiusdifferenz < 0.13 Å, Differenz der Elektronegativität < 0.2), Zink innerhalb der zweiten. Ein Teil der rückgestoßenen Kerne könnte allerdings auf Zwischengitterplätzen landen. Man kann zwei Arten von Zwischengitterplätzen unterscheiden (Waa74):

1. Es befindet sich eine Fehlstelle in unmittelbarer Nähe des Sondenkernes, so daß der reguläre Gitterplatz ein wenig aus seiner Normallage verschoben ist.
2. Es lagern sich mehrere Fehlstellen, die durch das Gitter diffundieren, um das Fremdatom an ("trapping") und bilden einen Fremdatom-Fehlstellen-Komplex.

Auf beide Gitterstörungen sind Hyperfeinfelder empfindlich. Bei Messungen an Edelgasen wurden bis zu vier "Satellitenfelder" entdeckt, die durch verschiedene Fehlstellenkonfigurationen um das Fremdatom erklärt werden konnten (Waa74). Fremdatome, deren Atomradius sich nicht sehr vom Atomradius der Gitteratome unterscheidet, zeigen jedoch nur eine Hyperfeinfeldkomponente (Waa74, Ber74). Unsere Messungen stehen im Einklang mit diesen Beobachtungen: Es wurden keine Satellitenfelder beobachtet. Über geringe Frequenzverschiebungen, die in der Dämpfung der Spinrotationsmodulation untergehen, kann allerdings keine Aussage gemacht werden.

Der rückgestoßene Sondenkern kommt nach ungefähr 10^{-12} Sekunden in einer Umgebung zur Ruhe, die infolge der selbstinduzierten Strahlungsschäden eine große Störstellenkonzentration hat. Da die Beweglichkeit der Fehlstellen mit wachsender Temperatur zunimmt, hängt der Ausheilprozeß des Kristalls von der Temperatur des Targets ab. Abschätzungen für das Nickelgitter ergeben (Ros74), daß eine Fehlstelle bei 360°C noch quasistatisch gebunden bleibt: Die Zeit, die zur Diffusion über drei Gitterplätze nötig ist, liegt bei $\sim$ 1 ms. Die Spinrotationsspektren sollten deshalb eine

Frequenzmodulation für eine statische kombinierte Wechselwirkung zeigen. Das ist jedoch nicht der Fall, denn die Interpretation für Zink in Nickel mit einer Funktion, die neben rein magnetischen Wechselwirkungen auch einen statisch-kombinierten Anteil mitnimmt, ergeben, daß der Anteil der kombinierten Wechselwirkung immer unter 1% liegt. Es fehlen eindeutig die für längere Zeiten nach der Strahlanregung charakteristischen "Substrukturen" in der Spinrotationsmodulation.

Das hier verwendete Modell, bei dem angenommen wird, daß die Magnetisierungsrichtung (easy axis) mit der Raumdiagonale des Kristalls identisch ist (Boz68) und der durch die Fehlstellen erzeugte Feldgradient die Richtung der Verbindungslinie zwischen Sondenatom und Fehlstelle hat, ist also zu einfach. Es könnte auf zwei Arten erweitert werden:

1. Man könnte auch asymmetrische Feldverteilungen zulassen und
2. man könnte in ihrer Richtung und ihrem Betrag zeitlich veränderliche Felder heranziehen.

Diese Modifikation des Modells ist nicht durchgeführt worden, weil die aufwendige Diagonalisierung der Winkelkorrelationsmatrizen an der Kapazität der Rechenanlage scheitert. Es liegt bereits ein Modell für zeitabhängige Fluktuationen vor, allerdings für rein magnetische Fluktuationen (vgl. Kapitel IV). Wieweit dieses Modell, das bei der weiteren Auswertung zugrunde gelegt wird, auch zeitlich fluktuierende kombinierte Wechselwirkungen erklären kann, ist bislang nicht geklärt. Da die Spektren von ^{100}RhNi und ^{111}CdNi, die mit Hilfe der $\gamma\gamma$-Winkelkorrelation ohne Teilchenbeschuß gewonnen wurden, bei tieferen Temperaturen ungedämpft sind, bei unseren Spektren jedoch bereits bei Zimmertemperatur eine Dämpfung auftritt (Abb. 6), muß man annehmen, daß Störstellen eine wichtige Rolle spielen. Der genaue Mechanismus, der zu diesen Dämpfungen führt, ist jedoch noch nicht geklärt.

Wichtig ist es an dieser Stelle festzuhalten, daß die Bestimmung der Hyperfeinfelder in dem in diesem Experiment benutzten Temperaturintervall nicht durch die Dämpfung be-

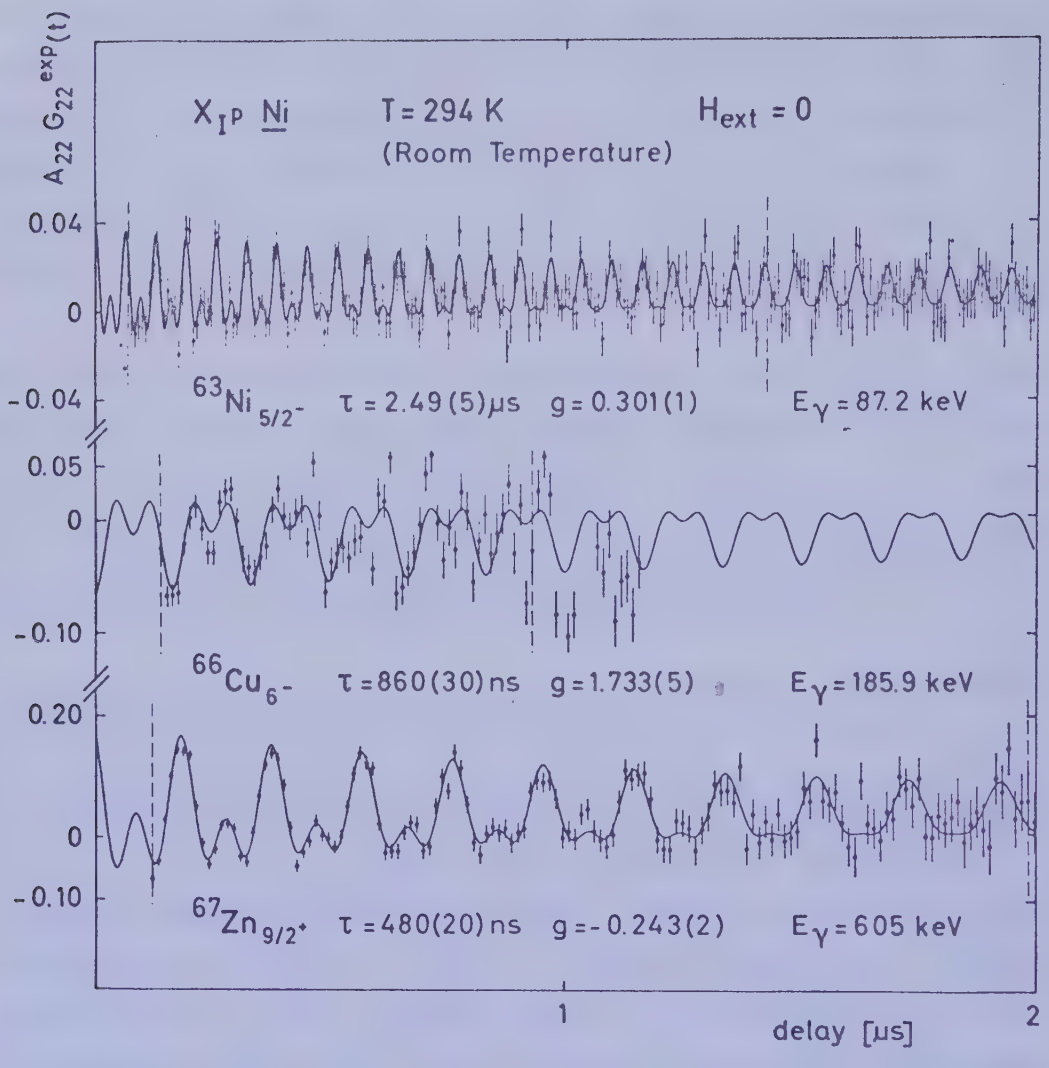


Abbildung 6: Spinrotationsspektren bei Zimmertemperatur für $^{63}Ni(5/2^-)$, $^{66}Cu(6^-)$ und $^{67}Zn(9/2^+)$ in Nickel.

einträchtigt wird; Messungen oberhalb von $(T_c - 0.5)^{\circ}C$ sind jedoch wegen der Dämpfung und der zusätzlich hinzukommenden Temperaturinstabilitäten bisher nicht möglich gewesen.

VII.3 Auswertungen

VII.3.1 Bestimmung der Hyperfeinfelder

Die Bestimmung der Hyperfeinfelder reduziert sich wegen der Gleichung

$$\omega_L = \frac{\mu_K}{\hbar} \cdot g \cdot H_{hf} \qquad \text{VII,1}$$

auf die Bestimmung der Larmorfrequenz der Spinrotationsspektren. Um die Meßspektren auf die in der Gleichung IV,14 angegebene Form für die Korrelationsfunktion zu bringen, muß von ihnen einmal ein konstanter Untergrund abgezogen werden und zum anderen muß auf die Lebensdauer korrigiert werden. Das letztere geschieht durch Bilden eines Doppelverhältnisses aus beiden Detektoren (Rib72, But72) oder durch Division durch ein Normspektrum, das nur die Lebensdauer enthält (Ble67).

Aus Paritätsgründen kommen in der allgemeinen Korrelationsfunktion nur Summanden mit geradem k vor, außerdem sind bei den Messungen am $^{63}Ni(5/2^-)$ und am $^{66}Cu(6^-)$ keine höheren Glieder als k = 2 beobachtet worden (Ble70, Rib72). Damit liegt die Spinrotation in der einfachen Form vor:

$$W(\theta,t,H_R) = A \cdot \frac{1}{5}\left[1 + 2\cos(\omega_L \cdot t) \cdot R_1 + 2\cos(2\omega_L \cdot t) \cdot R_2\right] P_2(\cos\theta). \qquad \text{VII,2}$$

Diese Gleichung gilt für eine polykristalline Probe. In ihr sind sämtliche Ausrichtungskoeffizienten in der Amplitude A der Modulation zusammengefaßt. Die Faktoren R_1 und R_2 sind zeitabhängige Dämpfungsfaktoren, die von dem speziellen Modell der Dämpfung abhängen (vgl. Tabelle 9).

Bei ^{67}Zn tritt zusätzlich ein k=4-Term von 5.2% auf (Ber74). Dieser Term hat keinen signifikanten Einfluß auf die Larmorfrequenzen gehabt, so daß er bei Funktionen mit komplizierten Dämpfungsfaktoren weggelassen worden ist. Die Korrelationsfunktion für die kombinierte Wechselwirkung, die zusätzlich zu den oben angeführten Funktionen nur bei der Auswertung der Daten von ^{67}Zn in Nickel benutzt wurde, wird an dieser Stelle nicht in kompakter Form angegeben, da die Diagonalisierung der Matrizen erst in Unterprogammen während der Anpassung durchgeführt wurde.

Für die Dämpfungsfaktoren R_1 und R_2 stehen verschiedene Modellansätze zur Verfügung. Nimmt man an, daß die gesamte Dämpfung der Spinrotationsmodulation von Temperaturfluktuationen hervorgerufen wird und daß die Temperaturvariation alle Werte von $\omega_L \pm \Delta\omega_L$ in einer kastenförmigen Temperaturverteilung gleich wahrscheinlich ist, so erhält man den Störungsfaktor durch Integration:

$$G_{22}^{exp}(t) = \int_{\omega_L-\Delta\omega_L}^{\omega_L+\Delta\omega_L} G_{22}(\omega,t)\,d\omega = \frac{1}{5}\left[1 + 2\cos(\omega_L t)\frac{\sin(\Delta\omega_L t)}{\Delta\omega_L t} + \right.$$

$$\left. + 2\cos(2\omega_L t)\frac{\sin(2\Delta\omega_L t)}{2\Delta\omega_L t}\right] . \qquad \text{VII,3}$$

Beispiele der Anpassung mit dieser Funktion sind in den Abbildungen 7 und 8 für ^{63}NiNi bei zwei verschiedenen Targettemperaturen dargestellt. Aus der Temperaturbreite dieser Spektren wird geschlossen, daß die Temperaturverschmierung kleiner als 0.7^{o} ist.

Für andere Frequenzverteilungen benutzt man zweckmäßigerweise eine Fouriertransformation, um aus dem Frequenzspektrum die gestörte Winkelverteilung zu erhalten. Der Dämpfungsparameter λ ist dabei ein Maß für die Breite der beobachteten Frequenzverteilung (nach But72).

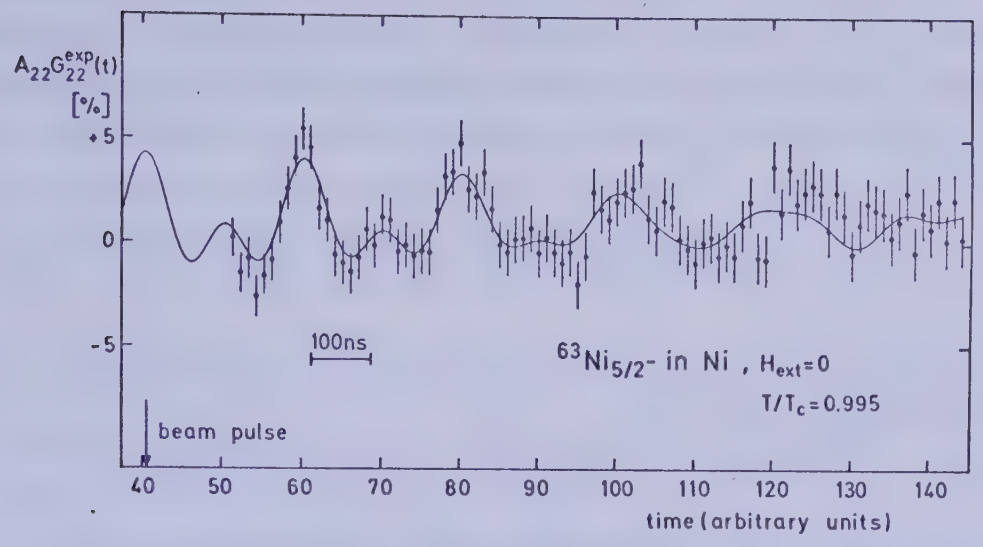


Abbildung 7: Spektrum für $^{63}Ni(5/2^-)$ in Nickel bei $T/T_c = 0.995$
Die Anpassung wurde unter der Annahme einer rechteckigen Temperaturverteilung durchgeführt (aus BalB74).

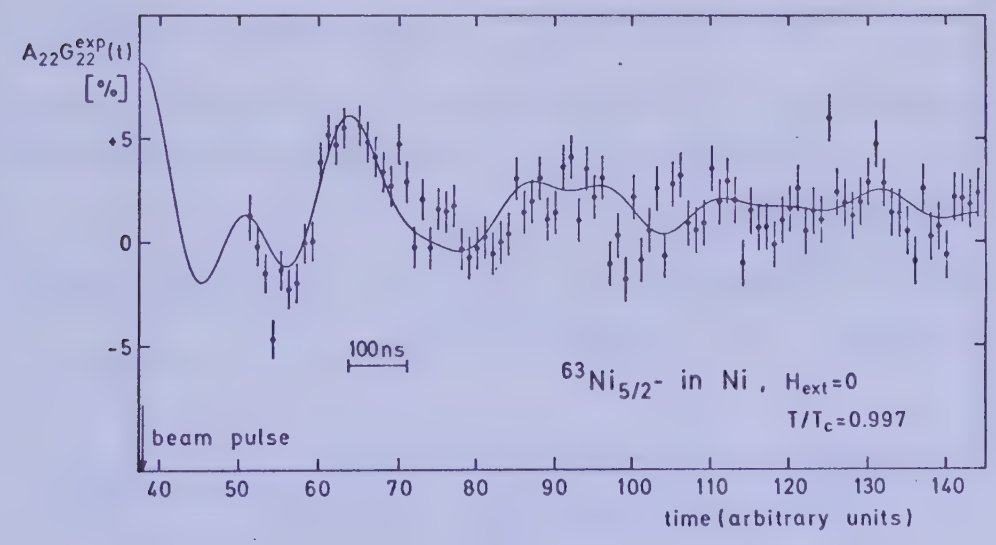


Abbildung 8: Spektrum für ^{63}NiNi bei $T/T_c = 0.997$
Es wurde eine rechteckige Temperaturverteilung angenommen.

Auch zeitabhängige Fluktuationen führen zu einer Dämpfung. Rechnungen von Gabriel und Bosse im Markoffschen Grenzfall, in denen die Dämpfung auf rein magnetische Fluktuationen zurückgeführt wird, liefern folgenden Dämpfungsfaktor (GabB71):

$$R_n(t) = \exp\left(\left[- k(k+1)/2T_1 + n^2 \cdot (1/T_2 - 1/T_1) \right] \cdot t \right). \quad \text{VII,4}$$

Dabei sind T_1 und T_2 longitudinale bzw. transversale Spin-Gitter-Relaxationszeiten.

Tabelle 9: Dämpfungsfaktoren für die verschiedenen Modellansätze.

Bei der Lorentz- und Gaußverteilung bedeuten λ_{FWHM} die vollen Halbwertsbreiten (full width half maximum, But72). T_1 und T_2 sind in der Rechnung von Gabriel und Bosse Spin-Gitter-Relaxationszeiten; τ_D ist die Diffusionskonstante (AbrP53).

Art der Dämpfung	Dämpfungsfaktor $R_n(t)$	Dämpfungskonstante λ_n
Frequenzverteilungen		
Kastenförmig	$\frac{\sin(n\lambda_K t)}{n\lambda_K t}$	$\lambda_K = \Delta\omega_L$
Lorentzförmig	$\exp(-n\lambda_L t)$	$\lambda_L = \frac{3\cdot 2\pi}{20} \cdot \frac{1}{2} \lambda_{FWHM}$
Gaußförmig	$\exp\left[-\frac{1}{2}(n\lambda_G t)^2\right]$	$\lambda_G = \frac{3\cdot 2\pi}{20} \cdot \frac{1}{2} \frac{1}{\sqrt{2\ln 2}} \lambda_{FWHM}$
Zeitabhängige Dämp.		
Dämpfung nach Gabriel und Bosse a) gesamt	$\exp\left[(-\lambda^{(1)} - \lambda_n^{(2)})t\right]$	$\lambda^{(1)} = k(k+1)\frac{1}{2T_1}$ $\lambda^{(2)} = n^2(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1})$
b) $\omega_{el} \ll \omega_L$	$\exp\left[-\lambda_n^{(2)} t\right]$ $= \exp\left[-n^2 \lambda_m t\right]$	
Dämpfung nach Abragam und Pound	$\exp(-\lambda_D t)$	$\lambda_D = \frac{1}{\tau_D}$

Wie bereits im Kapitel IV angeführt wurde, vereinfacht sich dieser Dämpfungsfaktor, so daß nur noch ein zu n^2 proportionaler Summand beibehalten werden muß. Bei der Auswertung wurde nur die Differenz $(1/T_2 - 1/T_1)$ als Dämpfungsparameter angepaßt, so daß über T_1 und T_2 keine Einzelaussagen gemacht werden können.

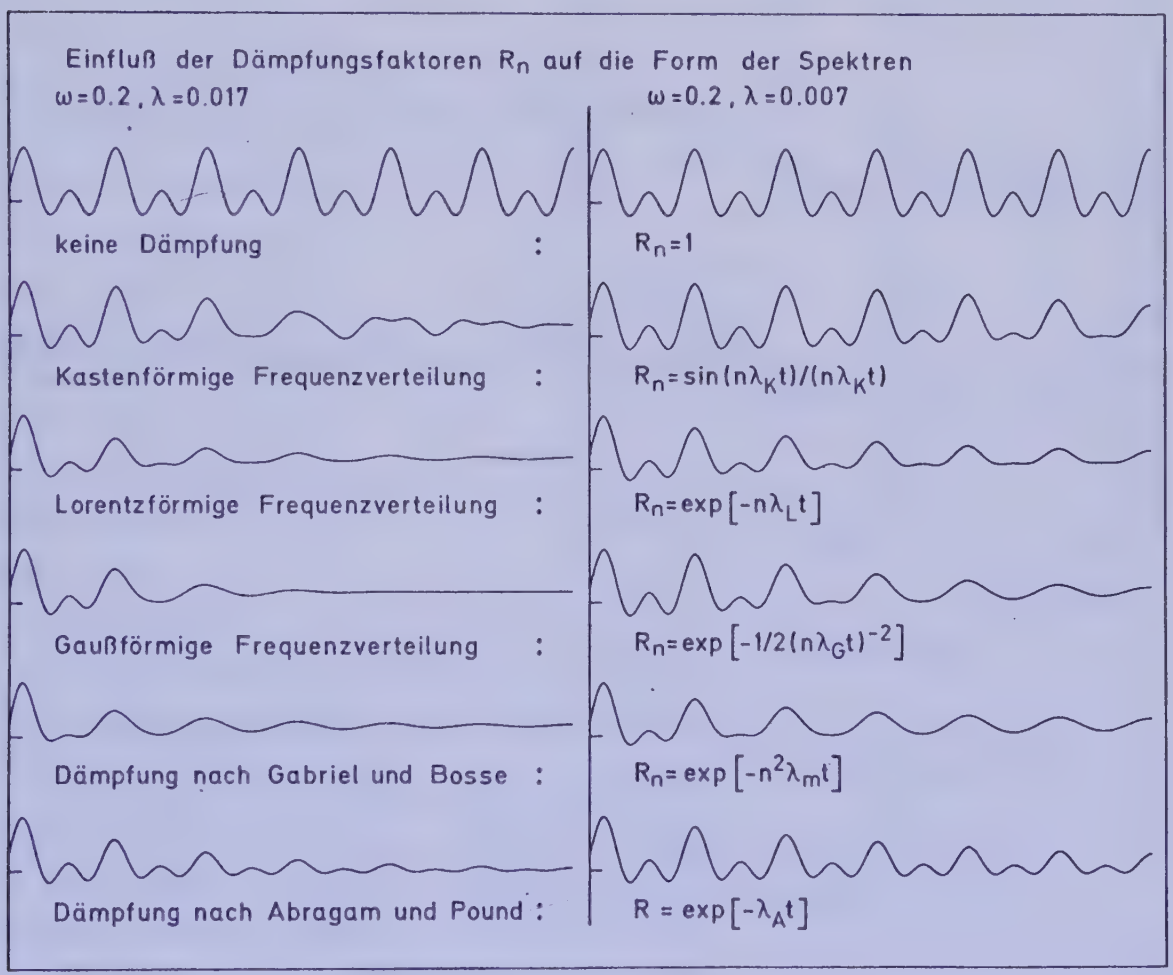


Abbildung 9: Einfluß der verschiedenen Dämpfungsfaktoren auf die Form der Spinrotationsspektren bei zwei verschiedenen numerischen Werten für die Dämpfungskonstante λ.

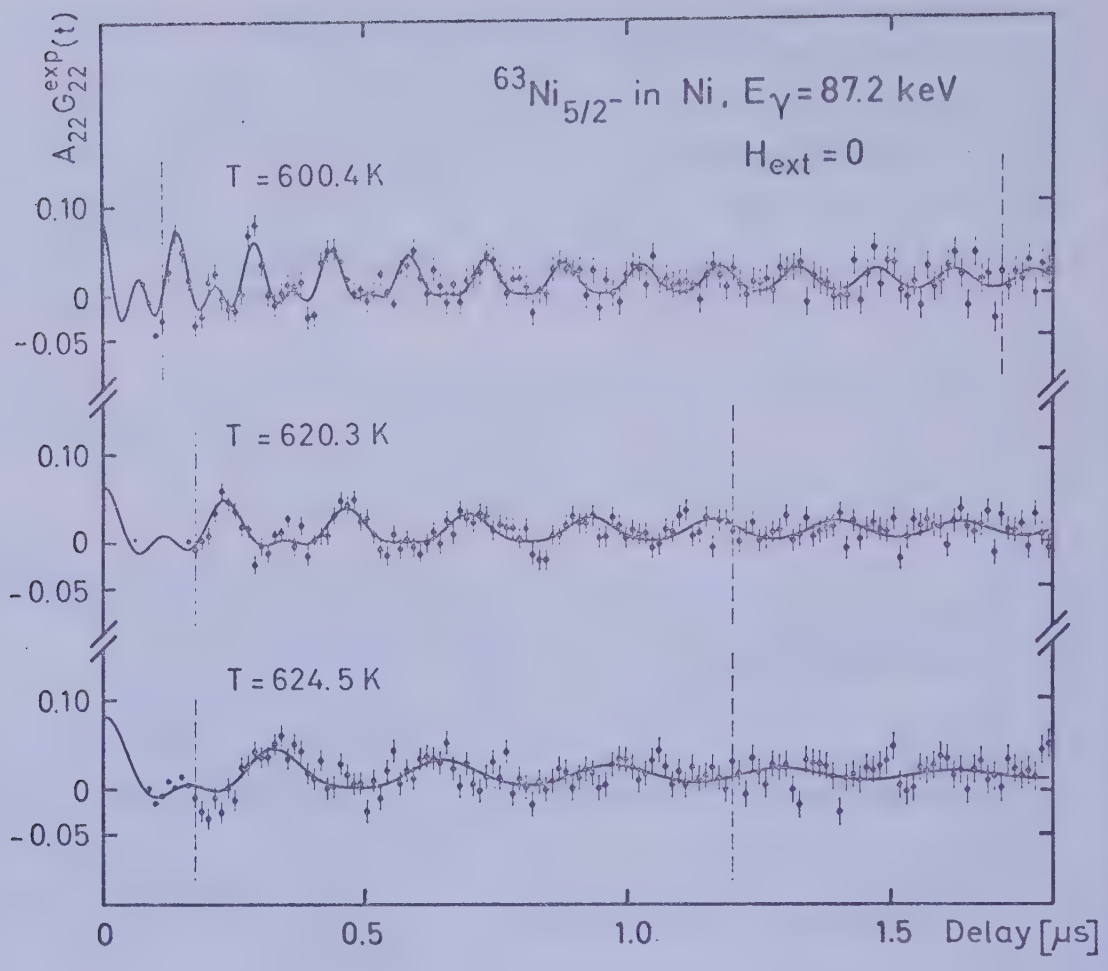


Abbildung 10: Modulation der Zeitspektren für ^{63}NiNi
Die Spektren zeigen die Larmorpräzession der angeregten ^{63}Ni-Kerne in einem statistisch orientierten internen Magnetfeld in Nickel bei verschiedenen Temperaturen unterhalb der Curietemperatur. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die Anpassung mit einer Funktion, deren Dämpfung durch den Dämpfungsfaktor von Gabriel und Bosse beschrieben wird.

Für $T_1 = T_2$ geht dieser Dämpfungsfaktor in den Faktor von Abragam und Pound über (AbrP53). Dabei wird angenommen, daß die Bewegung der Störstellen im Gitter zu Fluktuationen der Feldgradienten führt, so daß die Ausrichtung der rotierenden Sondenkernspins mit der Zeit ausgelöscht wird. Abragam und Pound erhalten einen n-unabhängigen Dämpfungsfaktor, der alle Frequenzen gleich stark mit einer Exponentialfunktion abschwächt:

$$R_n(t) = R(t) = \exp(-\lambda_D t). \qquad \text{VII,5}$$

Die in den Tabellen 10 bis 13 angegebenen Werte für die Hyperfeinfelder stützen sich fast ausschließlich auf Auswertungen, die mit der Winkelkorrelationsfunktion von Gabriel und Bosse durchgeführt worden sind, da sie eine Verbesserung im χ^2 gegenüber der gaußförmigen Frequenzverteilung brachte. Nur in der Nähe der Curietemperatur ($T_c - T \lesssim 3^\circ C$ gaben gauß- und kastenförmige Verteilungen gleich gute Anpassung.

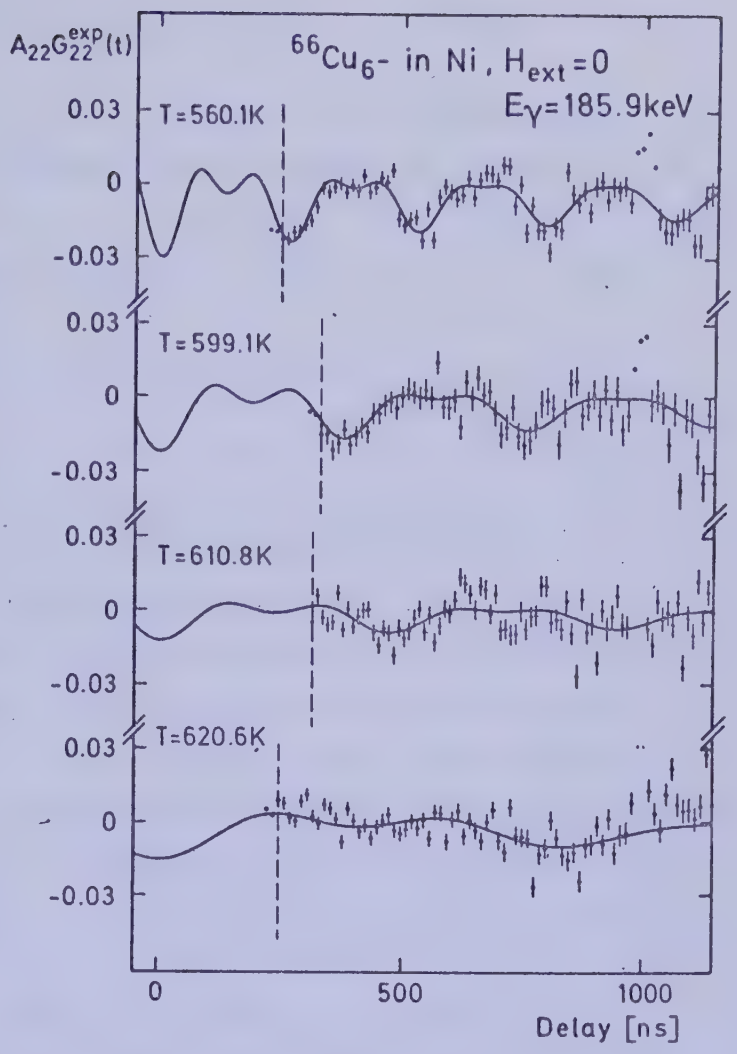


Abbildung 11: Spinrotationsspektren für $^{66}Cu(6^-)$ in Nickel bei verschiedenen Targettemperaturen

Benutzt wurde für die ersten drei Spektren der Dämpfungsfaktor von Gabriel und Bosse, für das letzte Spektrum eine gaußförmige Temperaturverteilung.

Die Tabelle 9 bringt eine Zusammenstellung aller Dämpfungsfaktoren, die in dieser Arbeit benutzt wurden, und die Abb. 9 zeigt den Einfluß der Dämpfungsfaktoren auf die Form der Spinrotationsmodulation.

Ausgewählte Ergebnisse für die Modulationen sind in den Zeichnungen 11 bis 13 dargestellt.

Zu erwähnen ist noch, daß bei der ersten Nickelprobe in der Nähe der Curietemperatur Modulationen auftraten, die nicht interpretiert werden konnten. Es wird vermutet, daß Quadrupolstörungen vorlagen , die durch starke Targetverunreinigungen hervorgerufen wurden. Für das Endergebnis der kritischen Exponenten wurden deshalb diese Messungen nicht berücksichtigt.

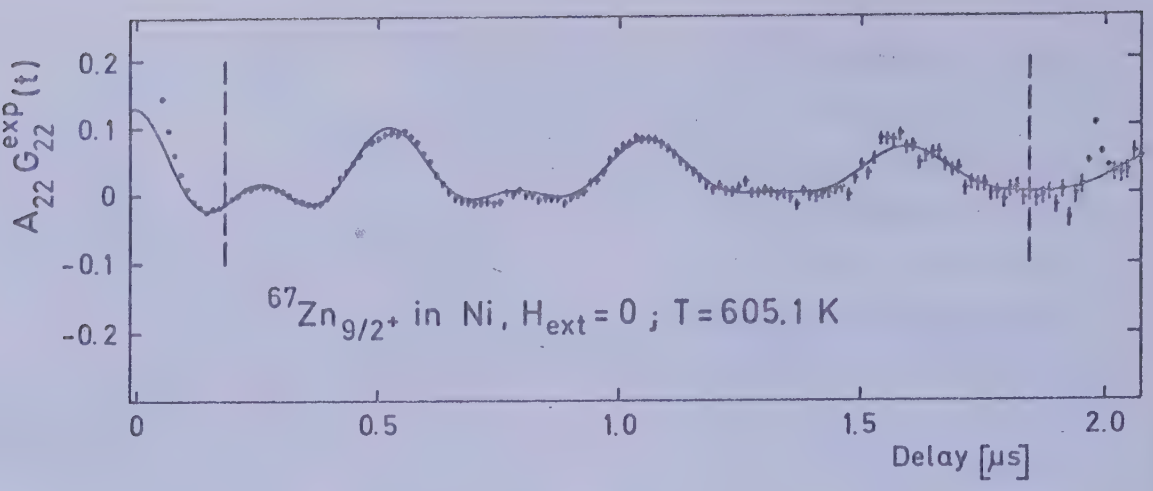


Abbildung 12: Modulation der gestörten Winkelverteilung von ^{67}Zn in Ni bei $H_{ext} = 0$ und einer Targettemperatur von T = 605.1 K (Dämpfungsfaktor von Gabriel und Bosse).

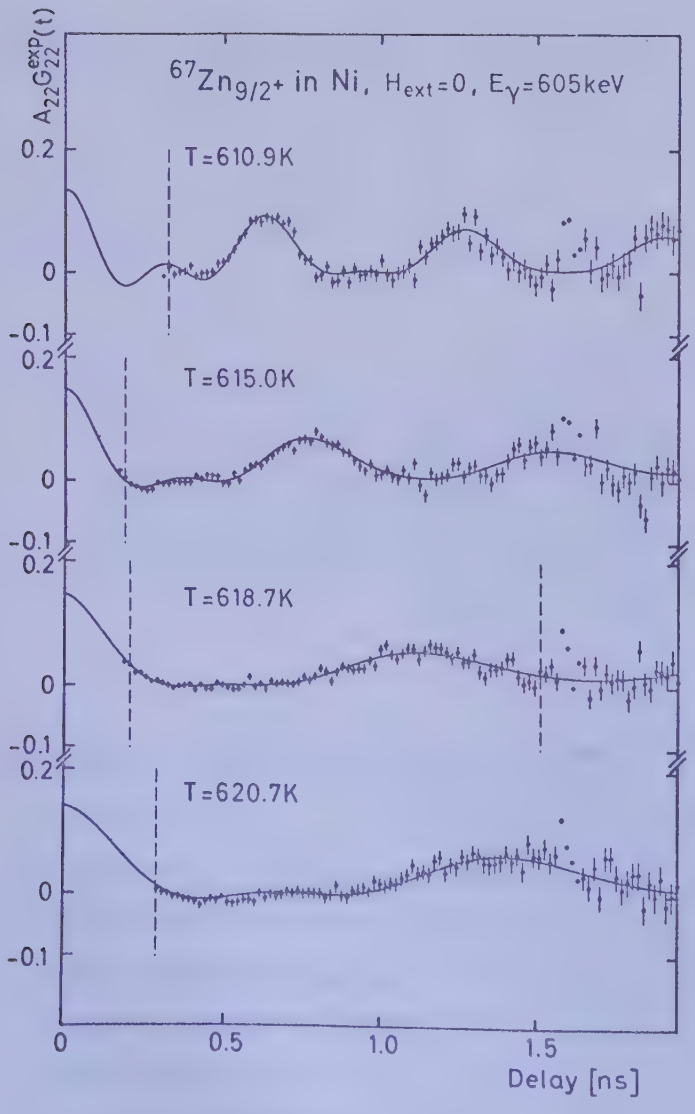


Abbildung 13: Modulationsspektren für $^{67}Zn(9/2^+)$ in Nickel in der Nähe der Curietemperatur (Bei sämtlichen Spektren wurde der Dämpfungsfaktor von Gabriel und Bosse benutzt.)

VII.3.3 Bestimmung der Targettemperatur

Als Regelthermoelement wird ein Nickelchrom-Reinstnickel-Element benutzt, das in der Mitte des Targets eingebörtelt war und somit die Temperatur im Strahlfleck maß. Lokale Aufheizungen durch den Beschleunigerstrahl innerhalb eines Strahlpulses (1 mm^2 Fläche, 6.2 MeV, 10 nA = 6.2 W/cm^2) sollten sich so schnell ausgleichen, daß das Target kurz nach dem Abklingen des Strahlpulses keine großen Temperaturstörungen durch den Strahl mehr aufweist. Eventuell vorhandene Temperaturgradienten können nicht größer als 0.7°C sein, wie die aus den Spinrotationsspektren abgeschätzte Temperaturverschmierung angibt (vgl. Kap. VII.3.2). Die experimentell tatsächlich vorliegende Temperaturbreite ist schwer abzuschätzen. Die am Regler gemessene Temperaturvariation ist geringer als 0.01°C. Damit reicht die Regelgeschwindigkeit aus, die Temperatur am Ort des Thermoelementes auf genügend konstanter Temperatur zu halten. Es ist deshalb zu vermuten, daß Temperaturgradienten im Target eine größere Rolle gespielt haben als Regelschwingungen.

Die Thermospannung wurde auf den Einfluß des Reglers RT16, der keinen unendlich hohen Eingangswiderstand hat, korrigiert. Dazu wurde die Thermospannung jeweils einmal mit angeschlossenem und nicht angeschlossenem Regler gemessen. Bei dem verbesserten Versuchsaufbau mit dem hochohmigen Vorverstärker entfielen diese Korrekturen. Das Thermoelement Nickelchrom-Reinstnickel hat keinen linearen Thermospannungsverlauf. Darum war eine Temperatureichung nötig, die von der Firma Heraeus in Hanau in dem interessierenden Temperaturbereich durchgeführt wurde und bis auf ±0.2°C genau ist. Der absolute Fehler der Temperaturmessung sollte diesen Bereich nicht überschreiten.

VII.3.4 Bestimmung der kritischen Exponenten

Zur Bestimmung der kritischen Exponenten β für die verschiedenen Sondenkerne wurde die folgende Gleichung benutzt:

$$H_{hf}(T)/H_{hf}(O) = B(1 - T/T_c)^{\beta} \quad . \qquad \text{VII,6}$$

$H_{hf}(T)$ sind dabei die Hyperfeinfelder und $H_{hf}(O)$ das Hyperfeinfeld bei O K, das im Kapitel V für den jeweiligen Sondenkern angegeben ist. Diese Gleichung wurde ursprünglich unter der Annahme aufgestellt, daß die Temperaturabhängigkeit am Kernort des jeweiligen Fremdatoms wenigstens im kritischen Bereich der spontanen Magnetisierung des Gitters folgt. Ist die Annahme nicht erfüllt, so gibt der mit Hilfe dieser Gleichung gefundene Wert für β nicht den kritischen Exponenten für das Wirtsgitter sondern für das spezielle Fremdatom im Wirtsgitter an. Auf die damit zusammenhängenden Fragen wird in der Diskussion eingegangen.

Die kritischen Exponenten β erhält man aus einer dreiparametrigen Anpassung mit B, T_c und β als Parametern. Die Curietemperatur T_c muß als freier Parameter behandelt werden, weil sie je nach dem Fremdatomanteil (Verunreinigungen) von Probe zu Probe unterschiedlich ist. Die Ergebnisse werden im folgenden Abschnitt angeführt.

Eine andere Auswertemethode, die von Heller und Benedek vorgeschlagen wird (HelB64), besteht aus einer Folge von "sensitiven" Diagrammen. Das erste Diagramm dient zur Bestimmung von T_c. Dazu wird $(H_{hf}(T)/H_{hf}(O))^{1/\beta}$ über der Temperatur aufgetragen und β so variiert, daß man eine Gerade durch die Meßpunkte legen kann. Der Schnittpunkt dieser Geraden mit der Abzisse legt den Curiepunkt fest. Dies ist in den Abbildungen 14 bis 16 dargestellt. Das zweite Diagramm zeigt in doppelt-logarithmischer Skala die Hyperfeinfelder über dem Temperaturparameter $|\varepsilon| = (1 - T/T_c)$. Der kritische Exponent β wird aus der Steigung der durch die Meßpunkte gelegten Geraden bestimmt. Das ist in den Abbildungen 20 und 21 dargestellt. Bei einem falschen Wert von T_c weichen die Meßpunkte der höheren Temperaturen (ε am kleinsten) von der Geraden ab, so daß mit Hilfe des grob gewonnenen Wertes für β wiederum eine Neubestimmung von T_c nötig ist.

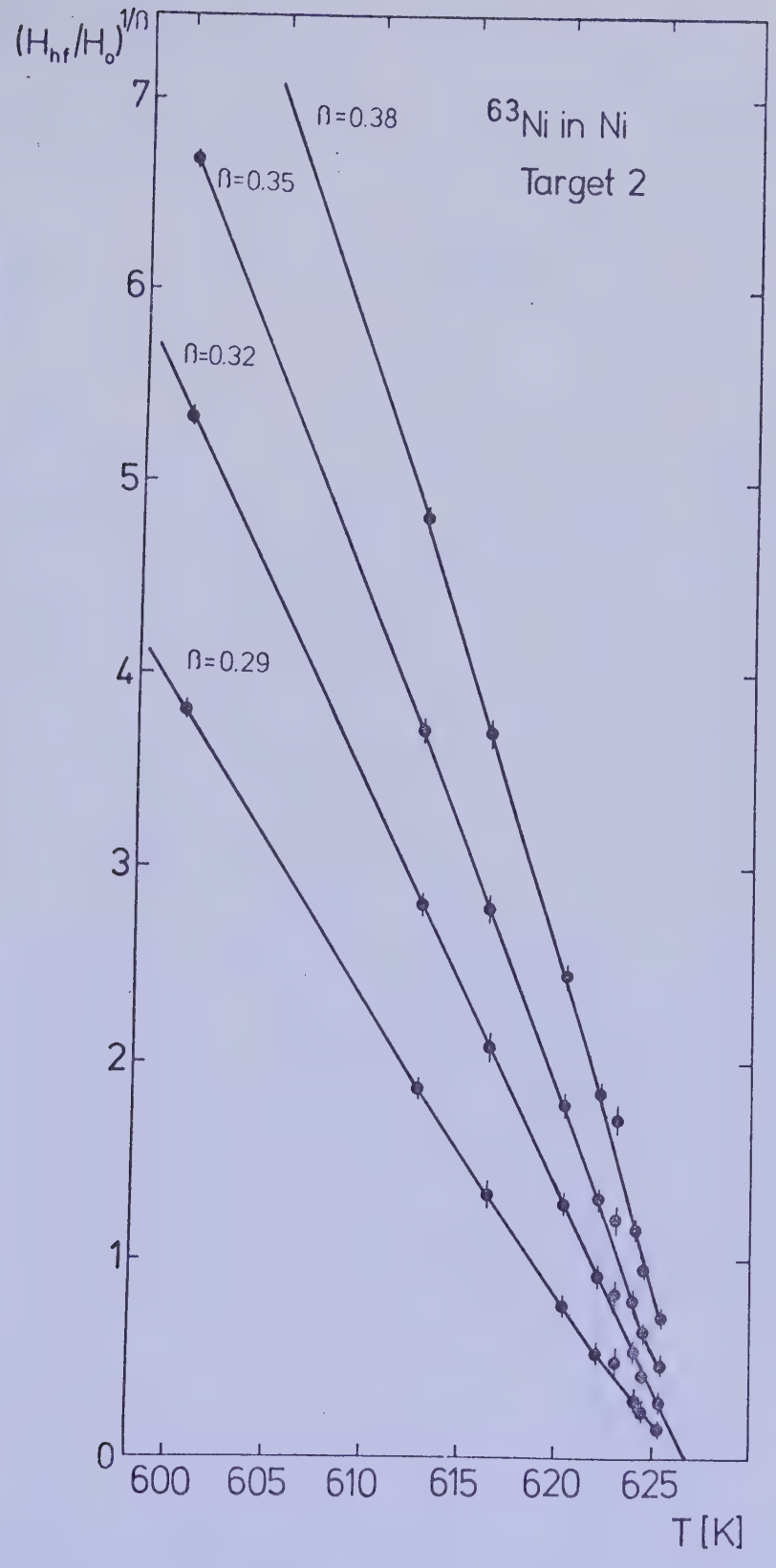


Abbildung 14: Darstellung von $(H_{hf}/H_o)^{1/\beta}$ über der Temperatur T für ^{63}NiNi (Target 2) zur graphischen Bestimmung der Curietemperatur.

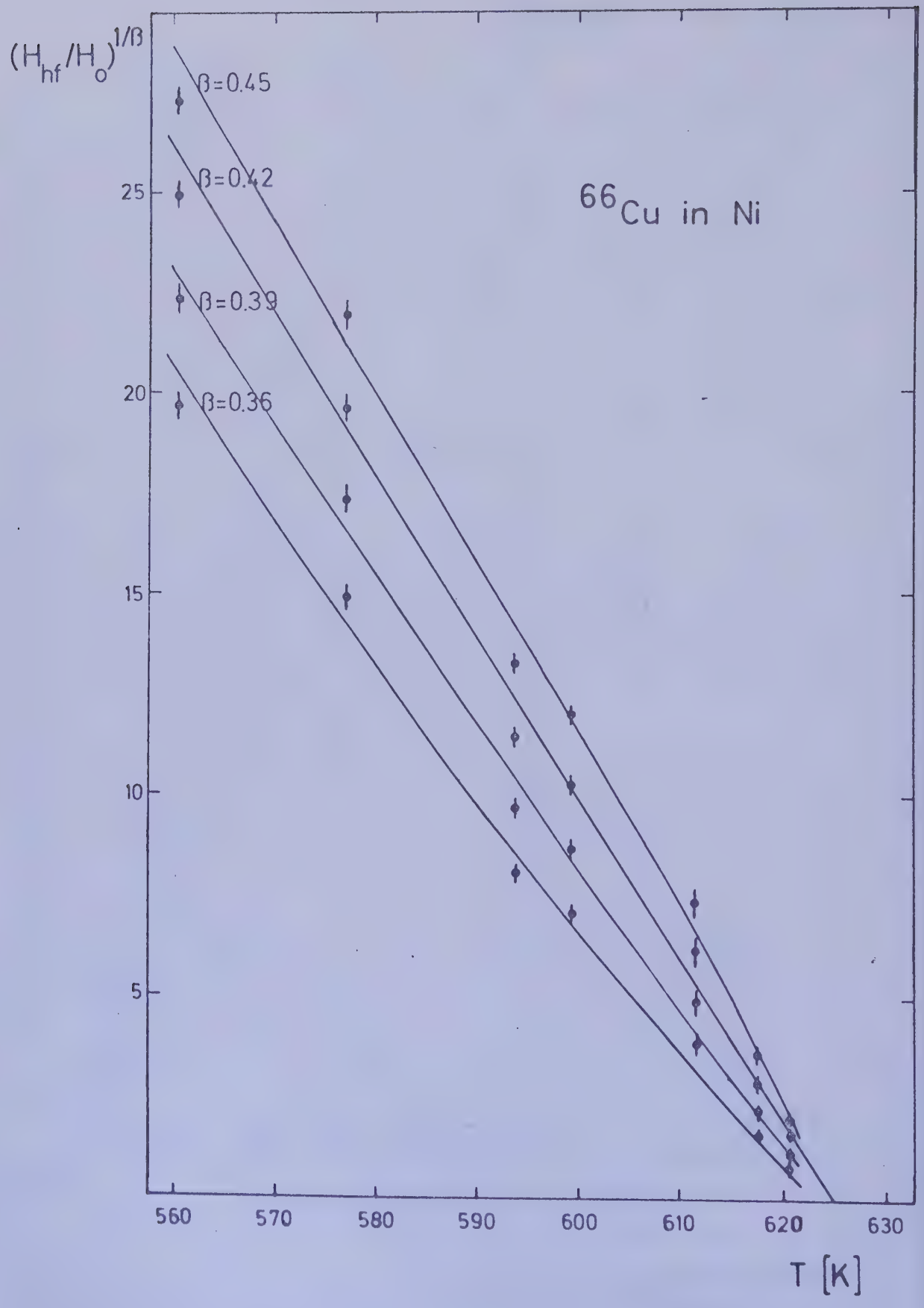


Abbildung 15: Darstellung von $(H_{hf}/H_o)^{1/\beta}$ über der Temperatur T für ^{66}CuNi.

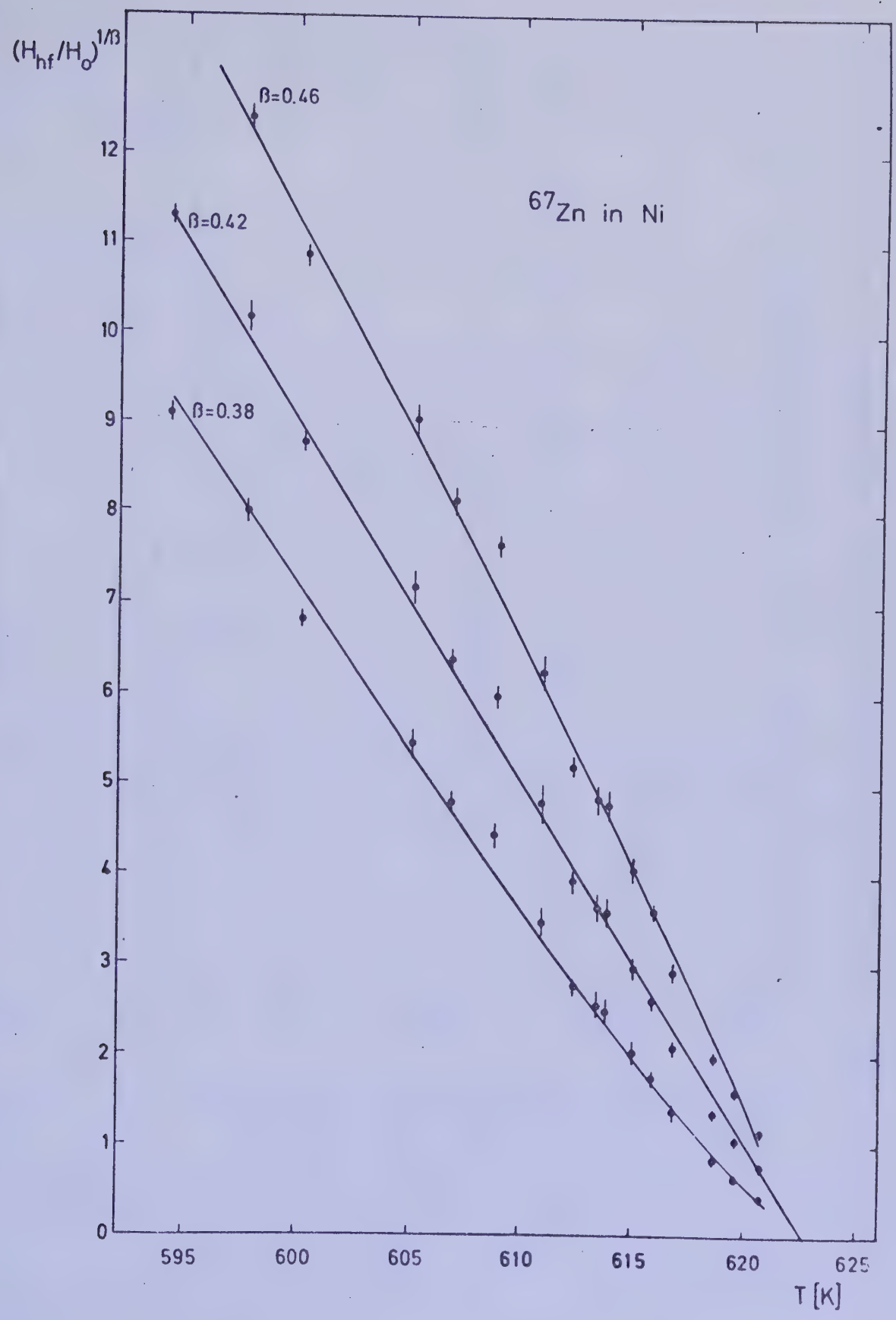


Abbildung 16: Darstellung von $(H_{hf}/H_o)^{1/\beta}$ über der Temperatur T für ^{67}ZnNi.

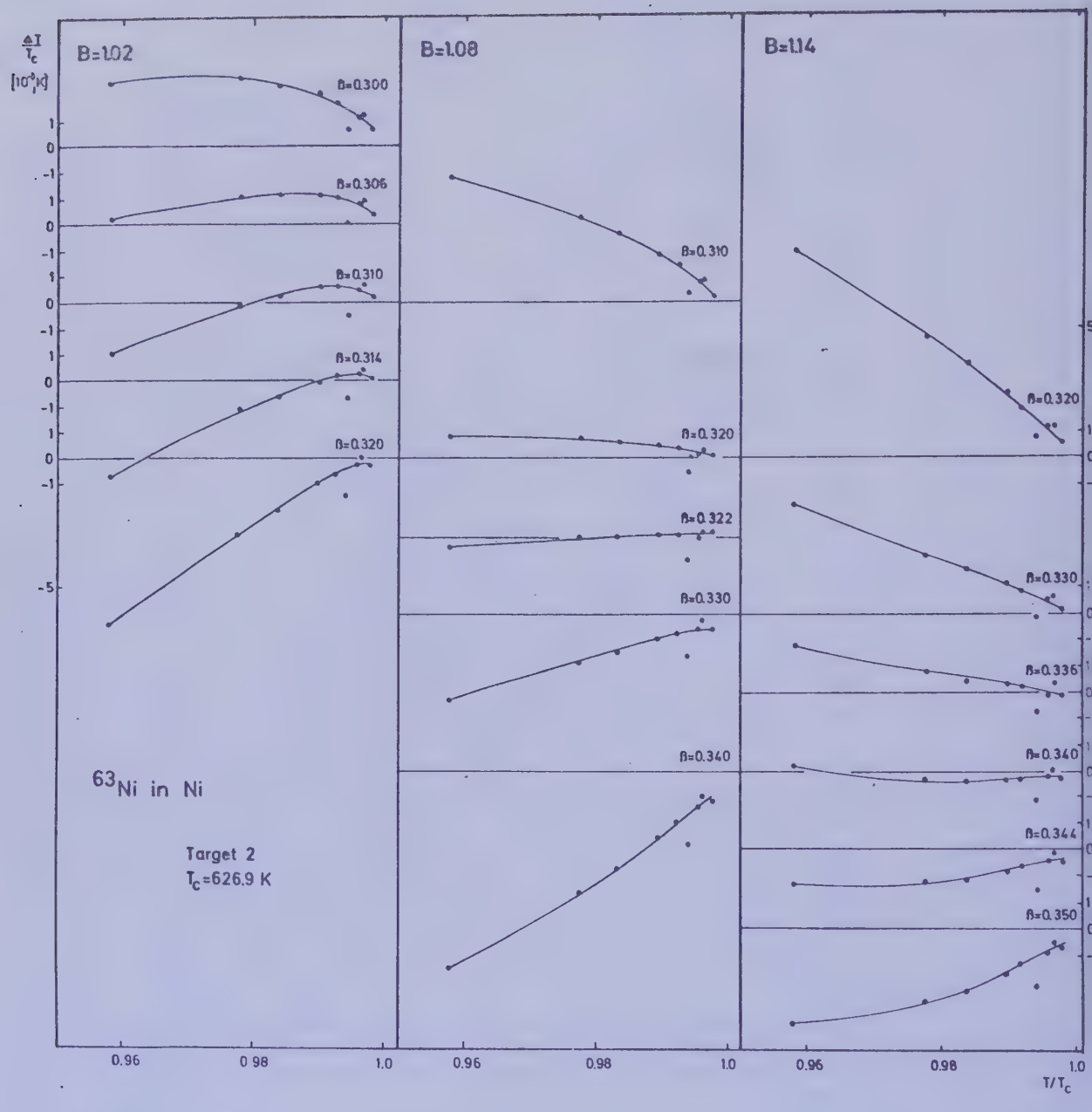
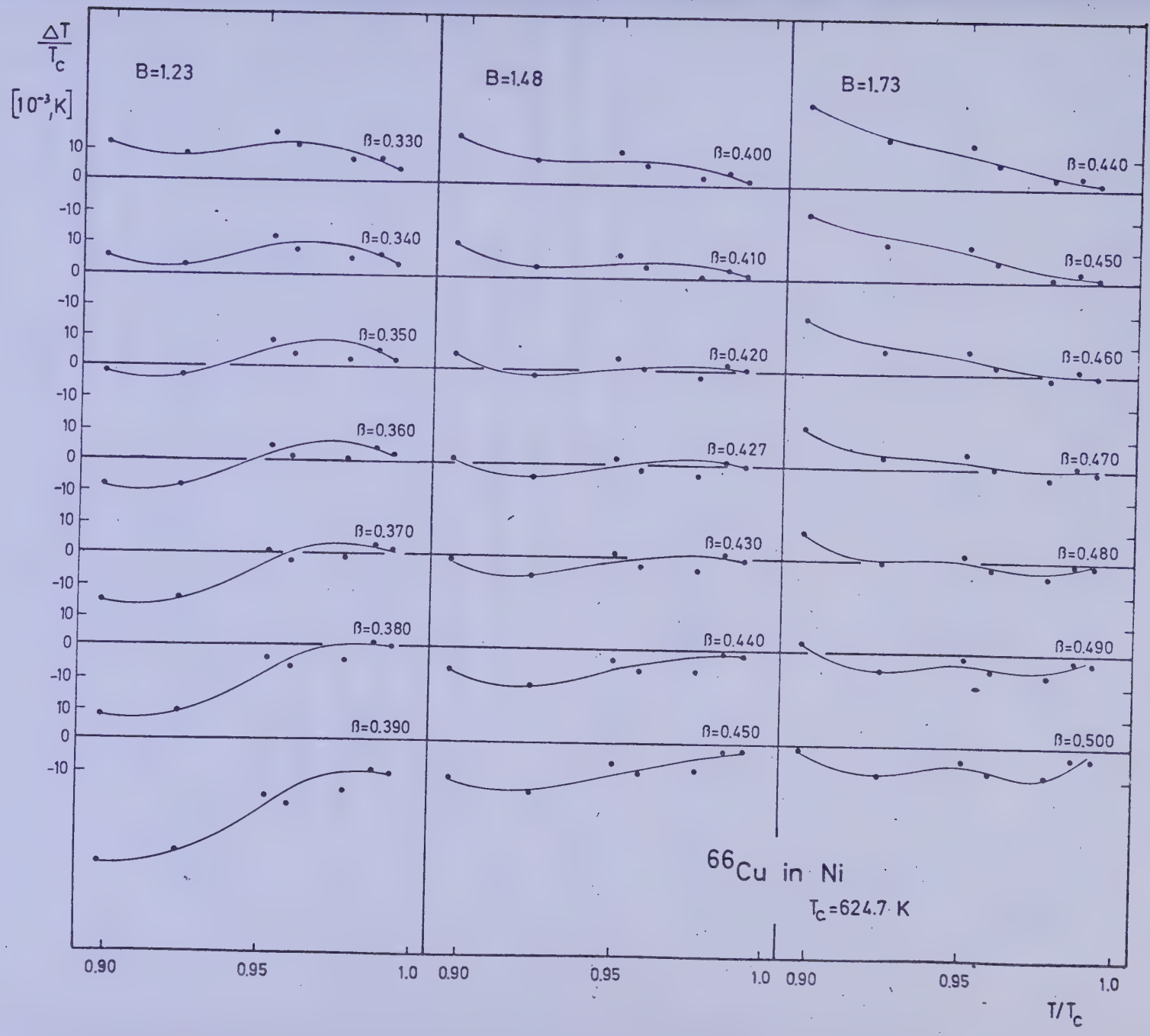


Abbildung 17: "Hellerdiagramme" für ^{63}NiNi
Aufgetragen ist die Größe $\Delta T/T_c$ der Gleichung VII,7 über der reduzierten Temperatur T/T_c für verschiedene Werte von B und β bei konstanter Curietemperatur T_c = 626.9 K.

Abbildung 18:

"Hellerdiagramme" für ^{66}CuNi



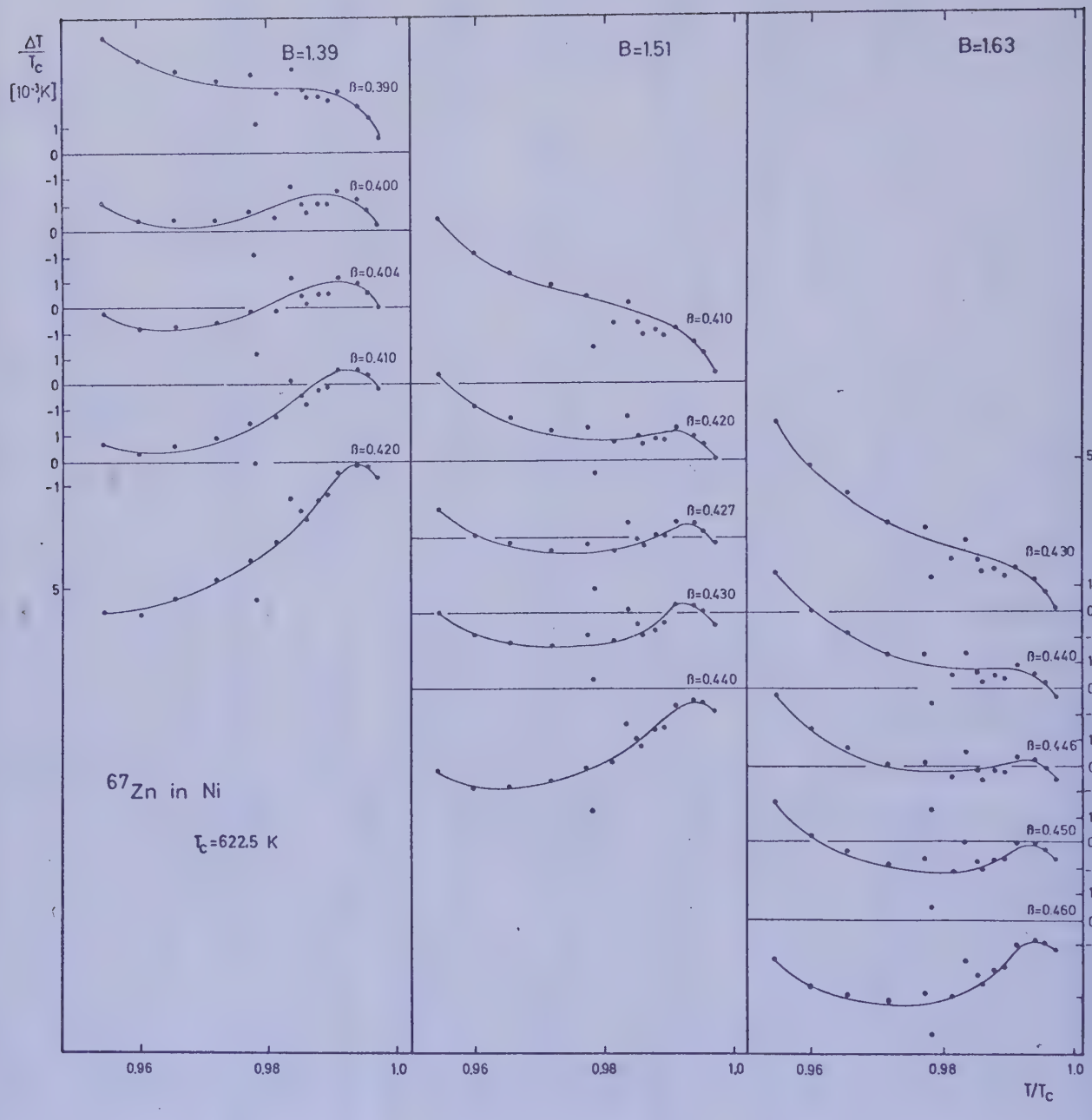


Abbildung 19: "Hellerdiagramme" für ^{67}ZnNi

Um Fehlerangaben für β zu finden, benutzt man mehrere Heller-Diagramme (HelB65) mit $(\Delta T/T_c)$,

$$\frac{\Delta T}{T_c} = (1 - T/T_c) - \{(1/B)\left[H_{hf}(T)/H_{hf}(O)\right]\}^{1/\beta} \quad , \qquad \text{VII,7}$$

über der reduzierten Temperatur (Abbildungen 17 bis 19). Diese reduzierten Abweichungen dürfen bei richtiger Wahl von β, B und T_c nur um die Nullinie streuen.

VII.4 Meßergebnisse

In den Tabellen 10 bis 13 sind die gemessenen Hyperfeinfelder in Abhängigkeit von der Targettemperatur für die verschiedenen Targets und Sondenkerne aufgeführt. Diese Angaben stützen sich ausschließlich auf Larmorperioden, die sich aus den Winkelkorrelationsspektren unter Benutzung des Dämpfungsfaktors von Gabriel und Bosse (vgl. Tabelle 9) ergeben. Ergebnisse aus Anpassungen mit anderen Dämpfungsfaktoren werden nicht angegeben. Erwähnt werden soll in diesem Zusammenhang allerdings, daß die in den Tabellen angegebenen Hyperfeinfelder in fast allen Fällen innerhalb der Fehlergrenzen mit den Hyperfeinfeldern übereinstimmen, die aus der Anpassung mit Hilfe einer gaußförmigen Frequenzverteilung gefunden werden. Die Fehlerangaben für die Hyperfeinfelder berücksichtigen nur die einfachen statistischen Fehler der Larmorperioden. Nur bei den mit + bezeichneten Werten für Zn in Nickel ist ein größerer Fehler angegeben, weil zwischen den Anpassungen mit festem Anfangszeitpunkt t_o und variablem t_o Diskrepanzen bestehen.

Die Abbildungen 20 und 21 zeigen die doppeltlogarithmischen Darstellungen von H_{hf} über $|\varepsilon|$. Die Fehler für $|\varepsilon|$ resultieren aus der Unsicherheit von T_c. Alle Ergebnisse für β, B und T_c sind in der Tabelle 14 verzeichnet. Der Unterschied zwischen den T_c-Werten der beiden Nickelproben wird auf die starke Verunreinigung der ersten Nickelprobe zurückgeführt. Aus diesem Grunde und wegen des großen

Fehlers in T_c der ersten Probe werden die Werte von β und B des zweiten Targets als verläßlicher angesehen. Angeführt sind in der Tabelle 14 jeweils in der ersten Zeile die Werte aus der Anpassung mit B, β und T_c als Parametern. Die Fehlerangaben repräsentieren dabei den einfachen statistischen Fehler. In der zweiten Zeile sind die Ergebnisse aus der graphischen Auswertung verzeichnet. Für T_c stimmen die Werte beider Auswertungen innerhalb der Fehlergrenzen überein. Analysen mit Hilfe der "Hellerdiagramme" bestätigen die Werte aus der Anpassung für B und β, ergeben allerdings etwas größere Fehler.

Diese Arbeit liefert also folgende kritische Exponenten für die drei Sondenkerne ^{63}Ni, ^{66}Cu und ^{67}Zn in Nickel:

^{63}Ni<u>Ni</u>: $\beta = 0.320(20)$ $\quad 2.3\cdot10^{-3} \leq |\varepsilon| \leq 4.2\cdot10^{-2}$

^{66}Cu<u>Ni</u>: $\beta = 0.425(50)$ $\quad 6.5\cdot10^{-3} \leq |\varepsilon| \leq 1.0\cdot10^{-1}$

^{67}Zn<u>Ni</u>: $\beta = 0.425(25)$ $\quad 2.8\cdot10^{-3} \leq |\varepsilon| \leq 4.6\ 10^{-2}$.

Die Ergebnisse dieser Messungen zeigen also deutliche Unterschiede zwischen dem kritischen Exponenten von ^{63}Ni<u>Ni</u> einerseits und den kritischen Exponenten der unmagnetischen Fremdatome ^{66}Cu<u>Ni</u> und ^{67}Zn<u>Ni</u> andererseits und werfen ernste Zweifel an der Gültigkeit der bisher im kritischen Bereich angenommenen Proportionalität zwischen dem Hyperfeinfeld an Fremdatomen und der Magnetisierung des untersuchten Nickelgitters auf. Modelle, die zur Erklärung dieser Diskrepanz beitragen können, werden im nächsten Kapitel behandelt.

Temperatur [K]	Hyperfeinfeld [kG]	Einfacher statistischer Fehler
593.2	30.11	0.09
602.2	25.83	0.28
607.2	23.77	0.23
609.4	22.23	0.23
611.2	20.50	0.29
612.2	18.57	0.19
614.2	17.60	0.24
615.2	15.69	0.28
616.2	14.98	0.29
617.7	14.19	0.39

Tabelle 10: Hyperfeinfelder für ^{63}NiNi bei verschiedenen Temperaturen für Target 1

Temperatur [K]	Hyperfeinfeld [kG]	Einfacher statistischer Fehler
600.4	29.02	0.20
612.7	23.60	0.14
616.4	21.37	0.27
620.3	18.27	0.29
622.1	16.42	0.26
623.1	15.95	0.20
624.1	13.71	0.42
624.5	12.75	0.42
625.4	11.40	0.20

Tabelle 11: Hyperfeinfelder für ^{63}NiNi für Target 2

Temperatur [K]	Hyperfeinfeld [kG]	Einfacher statistischer Fehler
560.1	28.57	0.14
577.1	25.87	0.20
593.7	20.62	0.14
599.1	19.73	0.28
610.8	15.78	0.33
616.6	11.45	0.22
620.6	8.97	0.23

Tabelle 12: Hyperfeinfelder für ^{66}CuNi bei verschiedenen Temperaturen

Temperatur [K]	Hyperfeinfeld [kG]	Einfacher statistischer Fehler
594.0	11.86	0.05
597.6	11.30	0.06
601.1	10.63	0.05
605.1	9.78	0.12
606.8	9.32	0.08
608.9	9.07	0.14+
610.9	8.26	0.14+
612.3	7.59	0.08
613.4	7.36	0.12
613.8	7.30	0.14+
615.0	6.77	0.12
615.9	6.41	0.07
616.8	5.84	0.11
618.7	4.88	0.09
619.6	4.42	0.09
620.7	3.83	0.09

Tabelle 13: Verzeichnis der Hyperfeinfelder für ^{67}ZnNi

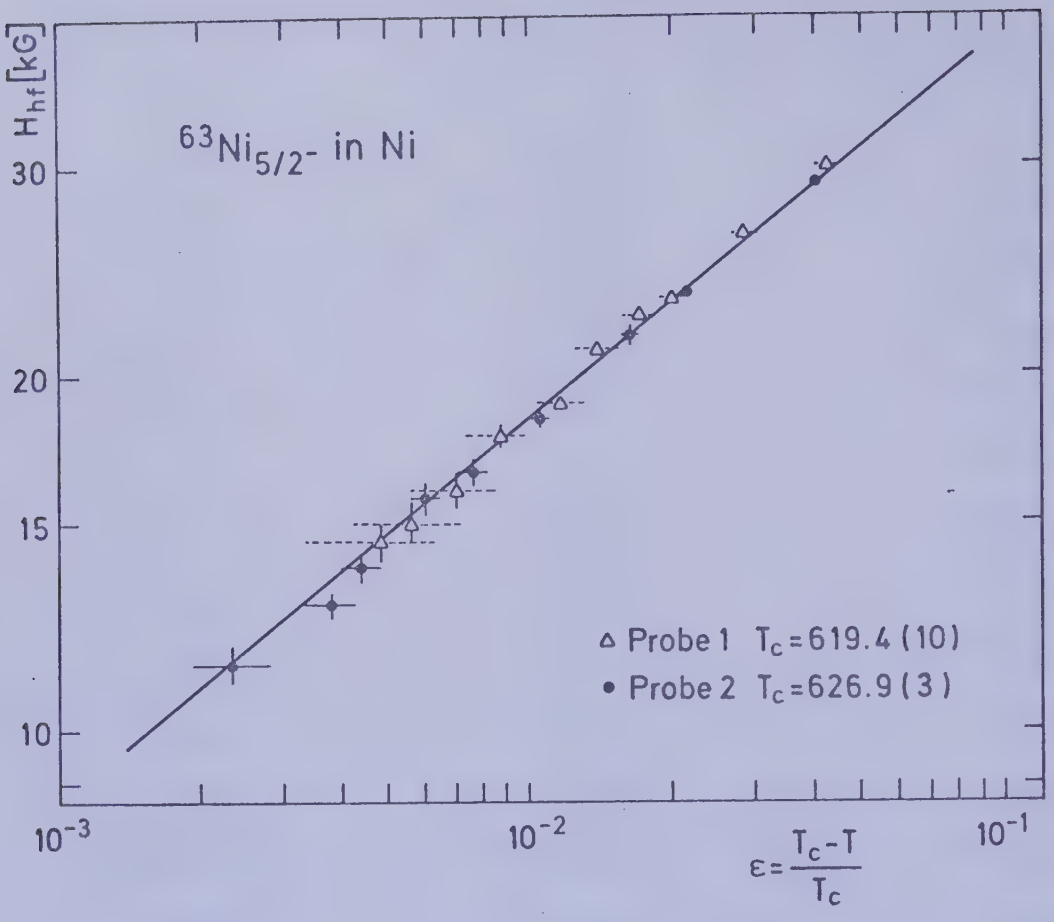


Abbildung 20: Doppeltlogarithmisches Diagramm für ^{63}NiNi
Aufgetragen sind die Hyperfeinfelder über dem Temperaturparameter $|\varepsilon|$ unterhalb der Curietemperatur T_c. Die waagerechten Fehlerbalken repräsentieren die Unsicherheit von T_c.

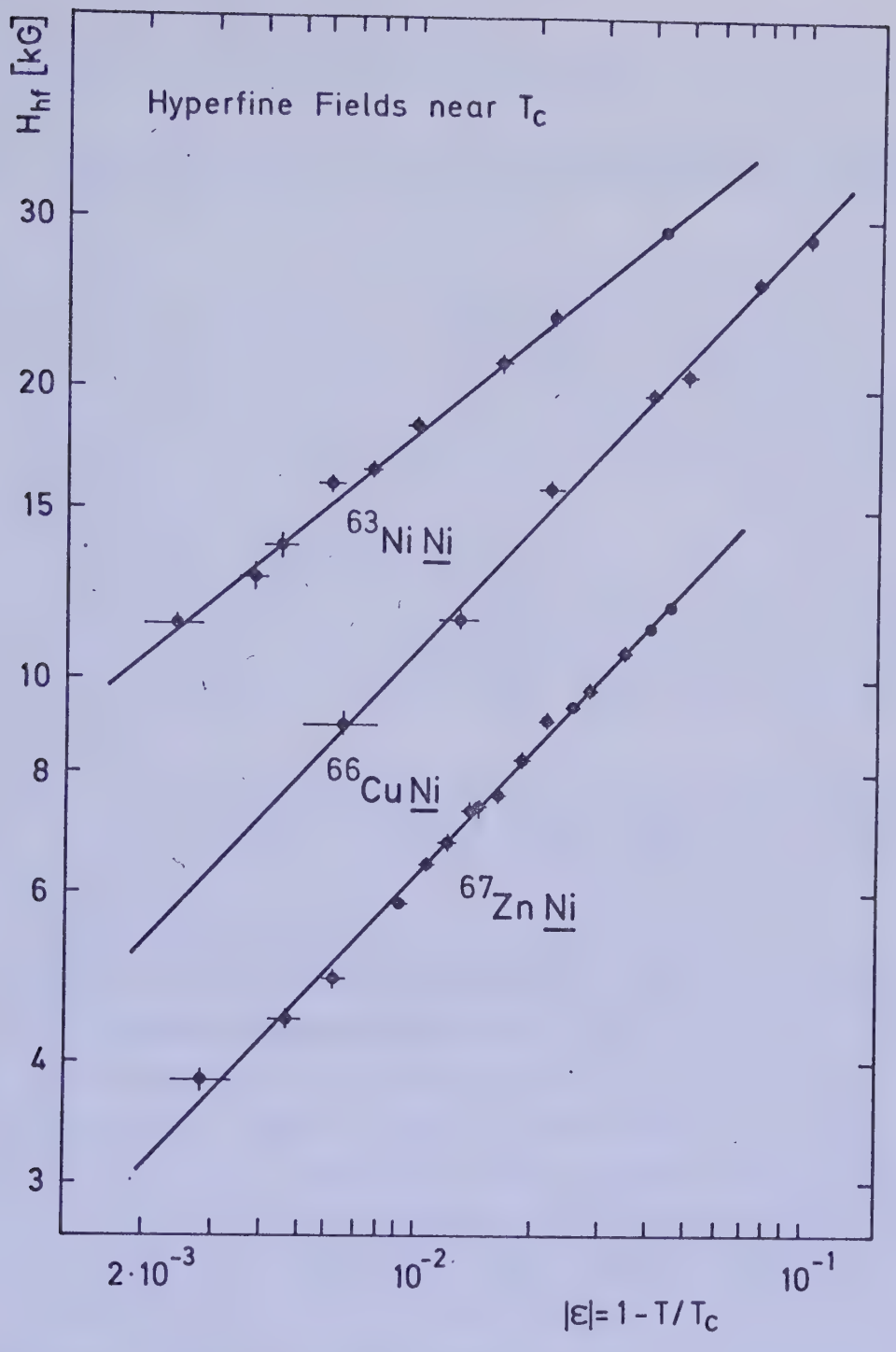


Abbildung 21: Doppeltlogarithmische Darstellung der Abhängigkeit der Hyperfeinfelder H_{hf} von der Temperatur in der Nähe der Curietemperatur T_c für ^{63}Ni, ^{66}Cu und ^{67}Zn im Nickelgitter. Der kritische Exponent ß für die verschiedenen Sondenkerne ergibt sich jeweils aus der Steigung der Geraden.

Sondenkern		β	B	T_c
^{63}Ni	Target 1	0.343(33)	1.19(12	619.4(1.0)
	Target 2	0.322(16)	1.08(6)	626.9(3)
		0.320(20)	1.08(6)	626.9(3)
^{66}Cu		0.427(42)	1.48(15)	624.7(1.6)
		0.425(50)	1.48(25)	624.7(1.6)
^{67}Zn		0.427(14)	1.51(6)	622.5(3)
		0.425(25)	1.51(12)	622.5(3)

Tabelle 14: Ergebnisse für β, B und T_c für die verschiedenen Targets und Sondenkerne.

Die Werte und Fehlerangaben jeweils in der ersten Zeile stammen aus der numerischen Anpassung mit β, B und T_c als Parametern (einfacher statistischer Fehler), die in der zweiten Zeile aus der graphischen Auswertung.

VIII Diskussion der gemessenen Werte

VIII.1 Übersicht über die bisherigen Meßergebnisse für die kritischen Exponenten

Die Meßergebnisse für die kritischen Exponenten sind keine materialunabhängigen Größen und, wie die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit zeigen, auch nicht sondenunabhängig. Um einen Überblick zu gewinnen, können die vorliegenden experimentellen Daten nach folgenden Gesichtspunkten eingeteilt werden:

1. Ferromagnete oder Antiferromagnete
   (benachbarte Spins sind parallel oder antiparallel)
2. ein-, zwei- oder dreidimensionale magnetische Gitter
   (der Ordnungsparameter hat eine, zwei oder drei Dimensionen)
3. Ising- oder Heisenbergmagnete
   (die Wechselwirkung hat eine große oder eine kleine Anisotropie)
4. Isolatoren oder Leiter
   (die Spins sind mehr oder weniger stark lokalisiert).

Auf Grund dieser Kriterien sind die Werte für den kritischen Exponenten β in den Tabellen 15 und 16 sowie in der Abbildung 22 zusammengestellt und geordnet. In der Tabelle 16 für Nickel erfolgt eine weitere Unterteilung nach den verwendeten Meßmethoden und im Zusammenhang damit nach den bei den Messungen benutzten kernphysikalischen Sondenkernen.

Die Tabellen führen nur dreidimensionale ferromagnetische Gitter auf; Antiferromagnete und auch "quasi-2d-Magnete" sollen nur ganz am Rande behandelt werden, weil sie zur Interpretation der im Nickel gemessenen kritischen Exponenten wenig beitragen.

Für Eisen, Kobalt und Gadolinium gibt es nur wenige Messungen, die zum Teil untereinander starke Diskrepanzen aufweisen. Aus diesem Grunde sind die Werte für diese

Metalle nicht in die Tabellen aufgenommen worden, und sie sollen hier nur kurz erwähnt werden: Mößbauermessungen von ^{57}FeFe (Pre67, Pre68) ergaben $\beta = 0.342(4)$ im Temperaturbereich von $10^{-3} \leq |\varepsilon| \leq 10^{-2}$ und $\beta = 0.37(2)$ für $10^{-4} \leq |\varepsilon| \leq 10^{-3}$. Da aus der Veröffentlichung nicht hervorgeht, wieweit inhomogene Linienverbreiterungen berücksichtigt wurden, hat Benski (Ben71) Zweifel an diesen Messungen. Er schließt die Möglichkeit nicht aus, daß die zwei Werte wie bei Howard et al. (HowD65) für ^{57}FeNi auf eine falsche Auswertung der unaufgelösten Spektren zurückgeführt werden können. Für Kobalt gibt es magnetokalorische Messungen, die für β den Wert $\beta = 0.412(4)$ ergaben (LanK69). Gadolinium ist kürzlich mit Hilfe einer neuen Hochfrequenztechnik untersucht worden. Der Wert liegt bei $\beta = 0.31(5)$ (ManS73). Die Autoren betonen, daß nicht erkannte systematische Fehler möglich sind. Aus anderen Messungen ergeben sich Werte von $\beta = 0.44(4)$ und $\beta = 0.37(1)$ (VicJ70).

Der größte Teil der Daten in den Tabellen 15 und 16 sind in die Abbildung 22 übertragen und dort innerhalb der Untergruppe nach ihrer Größe geordnet worden. Weggelassen worden sind Messungen, an deren Werten durch Nachmessungen starke Zweifel wachgerufen worden sind, wie z.B. die Messungen von Howard et al. (HowD65) am ^{57}FeNi (siehe auch VIII.2).

Fast alle diese Messungen bestätigen die grobe Einteilung nach den obigen Kriterien. So liegen die β-Werte für Substanzen mit großer Wechselwirkungsanisotropie deutlich tiefer als die Werte für Substanzen mit geringer Anisotropie, während fast alle Werte für den Leiter Nickel oberhalb des Heisenbergwertes liegen. Dieser Trend ist auffällig und könnte die Idee nahe legen, daß sich bei Leitern die Spindimension bzw. die Zahl der inneren Freiheitsgrade erhöht, wie es im Kapitel II.5 und Kapitel VIII.5 diskutiert wird. Allerdings könnte das Verhalten auch durch Dipolwechselwirkung erklärt werden, die zusätzlich zur reinen Spinwechselwirkung auftritt. Ansätze dazu werden in der Arbeit von Aharony und Fisher (AhaF73) gemacht. In

	S	β	B	Range of $1-T/T_c$	δ	Technique	Reference
Anisotropic compounds							
$DyPO_4$	$\frac{1}{2}$	0·314	1·661	1×10^{-4}–$3{\cdot}4\times10^{-2}$		Magnetoelectric effect	Rado (1969)
$Dy_3Al_5O_{12}$	$\frac{1}{2}$	0·26 ±0·02		1×10^{-3}–$5{\cdot}6\times10^{-2}$		Neutron scattering	Norvell *et al.* (1969)
$DyAlO_3$	$\frac{1}{2}$	0·311 ±0·005	1·51 ±0·03	5×10^{-3}–4×10^{-2}		Magnetoelectric effect	Holmes *et al.* (1971)
FeF_2	2	0·325 ±0·010	1·36 ±0·03	5×10^{-4}–1×10^{-1}		Mössbauer effect	Wertheim and Buchanan (1967)
$FeCl_2$	2	0·29 ±0·01	1·47 ±0·02	1×10^{-3}–1×10^{-1}		Neutron scattering	Yelon and Birgeneau (1972)
Isotropic compounds							
$Cu(NH_4)_2Br_4\,.\,2H_2O$	$\frac{1}{2}$	0·38 ±0·04	1·33 ±0·15	1×10^{-2}–2×10^{-1}	3·9 ±0·2	Induction	Wielinga and Huiskamp (1969)
		0·34 ±0·02		1×10^{-2}–1×10^{-1}	6·75 ±0·5	Induction	Suzuki and Watanabe (1971)
		0·37	1·46	1×10^{-3}–5×10^{-2}		N.M.R.	Klaassen *et al.* (1972)
		0·40 ±0·01	1·56 ±0·04	1×10^{-3}–6×10^{-2}		N.M.R.	Renard and Velu (1970)
					4·3 ±0·2	Induction	Velu *et al.* (1972)
$CuRb_2Br_4\,.\,2H_2O$	$\frac{1}{2}$	0·37	1·44	1×10^{-3}–5×10^{-2}		N.M.R.	Klaassen *et al.* (1972)
$CrBr_3$	$\frac{3}{2}$	0·365 ±0·015	1·32 ±0·07	7×10^{-3}–5×10^{-2}		N.M.R.	Senturia and Benedek (1966)
		0·368 ±0·005		1×10^{-4}–8×10^{-2}	4·28 ±0·1	Faraday effect	Ho and Litster (1970)
MnF_2	$\frac{5}{2}$	0·335 ±0·005	1·193 ±0·01	7×10^{-5}–8×10^{-2}		N.M.R.	Heller (1966)
$RbMnF_3$	$\frac{5}{2}$	0·316 ±0·008		6×10^{-3}–5×10^{-2}		Neutron scattering	Corliss *et al.* (1969)
EuO	$\frac{7}{2}$	0·34 ±0·02	1·14 ±0·04	$2{\cdot}7\times10^{-2}$–7×10^{-2}		Mössbauer effect	Groll (1971)
		0·367 ±0·008	1·18 ±0·03	1×10^{-2}–1×10^{-1}		Neutron scattering	Als-Nielsen *et al.* (1971)
		0·368 ±0·005			4·46 ±0·1	Kink method	Menyuk *et al.* (1971)
EuS	$\frac{7}{2}$	0·33 ±0·015	1·145 ±0·02	1×10^{-2}–1×10^{-1}		N.M.R.	Heller and Benedek (1965)
		0·360 ±0·012	1·18 ±0·04	$1{\cdot}5\times10^{-2}$–1×10^{-1}		Neutron scattering	Als-Nielsen *et al.* (1971)

Tabelle 14: Experimentelle Werte für β und δ einiger ferromagnetischer Isolatoren (aus JonM74 mit den Referenzen darin)

Tabelle 16:

Werte für den kritischen Exponenten β in Nickel Die Tabelle ist nach den Meßverfahren geordnet (SES-Analyse ist dabei die Analyse von Magnetisierungsdaten mit Hilfe der magnetischen Zustandsgleichung).

β	B	Bereich von $1-T/T_c$	Technik	Referenz
0.41(4)			SES-Reanalyse der Magnetisierungsdaten von WeiF26	KouR67
0.385				ArrN67
0.375(13)				VicJ70
0.378(4)	1.422		Magnetisierungsmess. SES,	KouC68
0.373(16)			SES-Reanalyse von KouC68	VicJ70
0.50(1)		$8\cdot10^{-5}$ - $2\cdot10^{-3}$	Magnetisierungsmess. Knotenmethode	AraT70
0.34(1)		$2\cdot10^{-3}$ - $6\cdot10^{-2}$		
0.380(5)		$2\cdot10^{-4}$ - $1\cdot10^{-2}$	"	MiyY70
0.346(7)		$2.4\cdot10^{-5}$ - $5.6\cdot10^{-3}$	" Ni	AndA71
0.34(1)		$3.0\cdot10^{-5}$ - $4.7\cdot10^{-3}$	" CuNi-Leg.	AndA71
0.50(2)			Neutronendepolarisation	BakR68
0.385(10)			"	Rek72
0.51(4)		$5\cdot10^{-4}$ - 10^{-2}	Hyperfeinfeld ^{57}FeNi,	HowD65
0.33(3)		10^{-2} - $1.6\cdot10^{-1}$	Mößbaereffekt	
0.38(1)	1.44	$5\cdot10^{-4}$ - $8\cdot10^{-2}$	"	GumS71
0.495(10)		$4.5\cdot10^{-4}$ - $2\cdot10^{-3}$	"	Gum70
0.405(10)		$2\cdot10^{-3}$ - $2\cdot10^{-1}$		
0.378(10)	1.56(6)	$2.7\cdot10^{-4}$ - $6\cdot10^{-2}$	"	BenR72
0.385(5)	1.28(2)	$1\cdot10^{-4}$ - 10^{-1}	Hyperfeinfeld ^{100}RhNi, TDPAC	RenH70
0.417(10)	1.35(5)	$5\cdot10^{-4}$ - $2\cdot10^{-1}$	Hyperfeinfeld ^{181}TaNi, TDPAC	OddB73
0.383(4)	1.31(1)	$3\cdot10^{-4}$ - $1.5\cdot10^{-2}$	Hyperfeinfeld ^{111}CdNi, TDPAC	KacG74
0.32(2)	1.08(6)	$2.3\cdot10^{-3}$ - $4.2\cdot10^{-2}$	Hyperfeinfeld ^{63}NiNi, TDPAD	
0.425(50)	1.48(25)	$6.5\cdot10^{-3}$ - $1.0\cdot10^{-1}$	" ^{66}CuNi, "	diese
0.425(25)	1.51(12)	$2.8\cdot10^{-3}$ - $4.6\cdot10^{-2}$	" ^{67}ZnNi, "	Arbeit

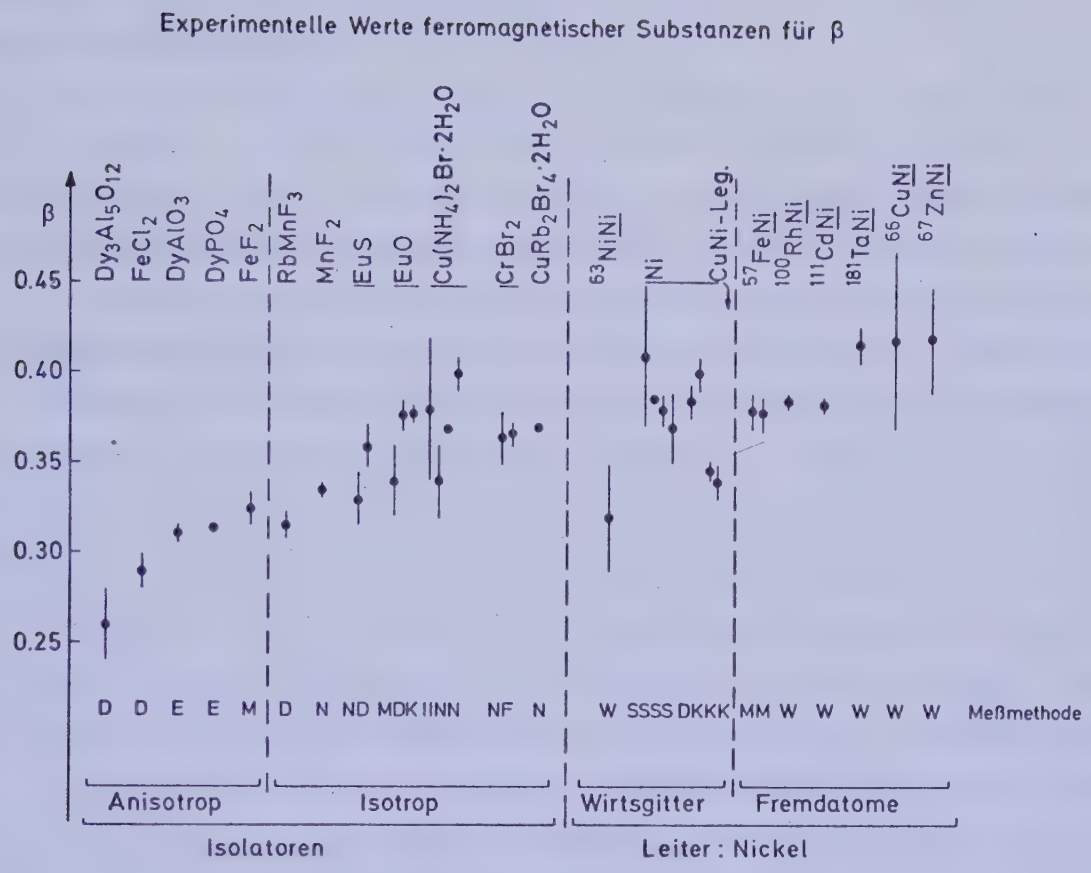


Abb. 22: Experimentelle Werte verschiedener 3d-Substanzen für den kritischen Exponenten β.

Die Werte wurden den Tabellen 14 und 15 entnommen und sind innerhalb der Untergruppen nach steigendem Wert geordnet. Für die Meßmethoden wurden folgende Abkürzungen gewählt: D: Neutronenstreuung, E: Magnetoelektrischer Effekt, F: Faraday-Effekt, I: Induktion, K: Knotenmethode, M: Mößbaereffekt, N: NMR, S: SES-Magnetisierungsmessung, W: gestörte Winkelkorrelation und Winkelverteilung.

diese Richtung deutet auch der Vergleich mit den Werten für Antiferromagneten, die tiefer als die Ergebnisse für Ferromagneten liegen.

Unter den 3d-Materialien kommen Isolatoren den Modellvorstellungen näher als Leiter, weil sie lokalisierte Spins besitzen. Insbesondere ist EuS wegen seiner geringen

Anisotropie und seines großen Spins von S = 7/2 am Europium die beste bisher bekannte Approximation für den klassischen f.c.c. Heisenberg-Ferromagneten. Ähnliches gilt für EuO. Die Werte dieser Substanzen können deshalb als Richtwert in der Tabelle 15 und der Abbildung 22 gelten. Wie bereits erwähnt, sollten die Werte für β spinunabhängig sein und nicht von der Gitterstruktur abhängen; sie hängen jedoch von der Anisotropie der Wechselwirkung ab: Die anisotropen Substanzen neigen mehr zum Ising-Wert, während die isotropen in der Nähe der Heisenberg-Voraussagen liegen (vgl. Abb. 22). Aus der Reihe fällt nur der Wert für $RbMnF_4$, der von de Jongh und Miedema in Frage gestellt wird (JonM74), weil er nur aus einer Anpassung über eine Temperaturparameterdekade gewonnen wurde. Andere Diskrepanzen treten bei $Dy_3Al_5O_{12}$ und $FeCl_2$ auf. Bei $FeCl_2$ finden de Jongh und Miedema einen Wert von β = 0.31, wenn man nur Meßpunkte zwischen $10^{-3} \leq |\varepsilon| \leq 10^{-2}$ berücksichtigt, während bei $Dy_3Al_5O_{12}$ Gitterunregelmäßigkeiten als mögliche Erklärung angeführt werden.

Etwas schwieriger zu übersehen ist die Situation bei Nickel. Hohenemser erwartet, daß man unabhängig von der Fremdatomprobe für β den Wert 0.38 erhalten sollte (Hoh74). Diese Vermutung könnte in der Tat durch die Messungen von ^{100}RhNi und ^{57}FeNi (RenH70, GumS71, BenR72) bestätigt werden, die mit einer Reihe von Magnetisierungsmessungen übereinstimmen. Auch Neutronendepolarisationsmessungen liefern nach einer neueren Auswertung β = 0.38 (Rek72) und berichtigen damit den alten Wert von β = 0.50 (BakR68). Aus der Reihe fallen jedoch die letzten "Kinkpoint"-Messungen an reinem Nickel (β = 0.346(7)) und an CuNi-Legierungen (β = 0.34(1)) (AndA71) und der Wert für NiNi dieser Arbeit, der mit den Knotenpunktmessungen innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmt. Für NiNi liegt β damit im übrigen näher am Isingwert von β = 0.312 als am Heisenbergwert von β ∿ 0.36.

Die Fremdatome Ta, Cu und Zn, deren Hyperfeinfelder hauptsächlich durch Leitungselektronenpolarisation hervorgerufen werden, zeigen systematisch größere Werte als "magnetische"

Fremdatome. Diese Abweichungen scheinen signifikant zu sein und könnten qualitativ sowohl durch eine Störung der Gitterumgebung des Fremdatoms als auch durch die "Spinblockhypothese" erklärt werden.

Als Nebenbemerkung soll noch etwas über die Gitterdimension d gesagt werden. Man erwartet, daß sich in unmittelbarer Nähe der Curietemperatur alle Substanzen wie dreidimensionale Magneten verhalten (JonM74). Es gibt jedoch Substanzen, die "quasi-2d-Magneten", deren Wechselwirkungsstärke J_h in der horizontalen Gitterrichtung so klein ist, daß sich zusätzlich zum dreidimensionalen Übergang bei einer anderen Übergangstemperatur ein zweidimensionaler bemerkbar machen kann. Es bildet sich dann ein Übergangsgebiet zwischen einem 2d- und einem 3d-Verhalten aus, das einen großen Teil des kritischen Bereiches einnimmt. Kritische Exponenten,die über größere Temperaturbereiche gemessen werden, sind Mittelwerte aus beiden Systemen. Als Beispiel für Substanzen, bei denen ein 2d-Verhalten bis nahe an T_c beobachtet wird, werden die anisotropen antiferromagnetischen Salze K_2CoF_4 und Rb_2CoF_4 angeführt, die den Wert des 2d-Isingmagneten ($\beta=1/8$) innerhalb des Meßfehlers widergeben (JonM74).

Um die Folgerungen aus der "Scaling"-Hypothese zu prüfen, werden die Werte für die anderen kritischen Exponenten herangezogen. Wie man aus der Tabelle 17 sieht, sind die postulierten Beziehungen für eine Reihe von Isolatoren gut erfüllt. Für Nickel sind "Scaling"-Beziehungen nicht zu prüfen, da keine voneinander unabhängigen Messungen für die kritischen Exponenten β, γ und δ existieren. Nach einer groben Abschätzung, bei der die aus Magnetisierungsdaten gewonnenen extremsten Werte für γ und δ benutzt werden (KouC68, VicJ70), sind für β Werte zwischen 0.358 und 0.326 erlaubt. Der Hyperfeinwert für NiNi liegt knapp außerhalb dieses Intervalls.

	$2\beta+\gamma$ $(=2-\alpha)$	$\beta(\delta+1)$ $(=2-\alpha)$	$\gamma-\beta(\delta-1)$ $(=0)$	$\gamma-\nu(2-\eta)$ $(=0)$	$\beta+\gamma$ $(=\Delta=\Delta')$	$\beta\delta$ $(=\Delta=\Delta')$	γ	β
FeF_2 (β=0.32; γ=1.38)	2.03				1.705			
$Cu(NH_4)_2Br_4.2H_2O$ (β=0.37; γ=1.31; δ=4.3)	2.05	1.96	0.09		1.68	1.59		
$CrBr_3$ (γ=1.22; β=0.37; δ=4.3)	1.96	1.96	-0.001		1.59	1.59		
MnF_2 (β= 0.335; γ=1.27; ν=0.63; η=0.05)	1.94			0.04	1.61			
$RbMnF_3$ (β= 0.32; γ=1.39; ν=0.72; η=0.07)	2.03			0.00	1.71			
EuO (β=0.37; γ=1.40; δ=4.5)	2.14	2.04	0.11		1.77	1.67		
EuS (β=0.35; γ=1.39)	2.09				1.74			
$^{181}TaNi$ (β=0.417; δ=4.4)		2.25				1.83	1.42	
$^{63}NiNi$ (β=0.32; δ=4,44)		1.74				1.42	1.10	
Nickel (Extremwerte)								
(γ=1.28; δ=4.58)								0.350
(γ=1.34; δ=4.22)								0.416

Tabelle 17: Test der aus der "Scaling"-Hypothese gefolgerten Beziehungen zwischen den kritischen Exponenten einiger 3d-Magnete (teilweise aus JonM74)
Die theoretischen Werte für den 3d-Ising- und 3d-Heisenbergmagneten sind: $\beta+\gamma = \beta\delta \approx 1.6$ bzw. 1.8.

VIII.2 Zwei Werte für den kritischen Exponenten β?

Die Diskussion über einen möglichen zweifachen Wert von β ist lange Zeit geführt worden und deutet sich in der Tabelle 16 in den Meßergebnissen von Howard et al. (HowD65) und Arajs et al. (AraT70) an. Der Exponent sollte sich danach innerhalb des kritischen Bereiches ändern, und zwar von 0.51 für $|\varepsilon| \lesssim 9 \cdot 10^{-3}$ auf 0.33 für höhere Temperaturen (HowD65). Auch Gumprecht findet bei den Messungen zu seiner Diplomarbeit ein solches Verhalten (Gum70).

Eine theoretische Erklärung für solch eine Änderung können sowohl Kadanoff et al. (KadG67) als auch Riedel und Wegner (RieW69) geben. Während Kadanoff annimmt, daß in der unmittelbaren Nähe des Curiepunktes die kurzreichweitigen Austauschkräfte so stark nachlassen, daß langreichweitige Dipolkräfte das System bestimmen, vermuten Riedel und Wegner, daß Anisotropiekräfte, die entweder durch anisotrope Spinaustauschwechselwirkungen oder Kristallfelder entstehen, eine Änderung des kritischen Exponenten hervorrufen. Nach Riedel und Wegner könnte es zwei, drei und mehr leichte Achsen geben, so daß Phasenübergänge zweiter Art von großen Fluktuationen der lokalen Ordnungsparameter begleitet seien, wobei die Anisotropie versuche, nur transversale Fluktuationen zu unterdrücken, die longitudinalen aber unverändert lasse, was zu einer Änderung der effektiven Symmetrie des Systems führe.

Die experimentelle Bestätigung der Änderung des kritischen Exponenten β ist aber äußerst umstritten. In der Arbeit von Arajs et al. (AraT70) ist der doppelte Wert von β auf eine falsche Extrapolation auf T_c zurückzuführen, wie in der Veröffentlichung von Anderson et al. (AndA71) gezeigt wird. Widersprüchlich sind auch die Messungen für ^{57}Fe in Nickel. Gumprecht (Gum70) und Howard et al. (HowD65) fanden bei ihren Mößbauerversuchen zwei Werte, während Benski (Ben71) mit einer verfeinerten Apparatur nur einen Wert feststellte. Somit liegt die Vermutung nahe, daß der doppelte Wert von β nur durch einen Fehler in der Auswertung

(falsches T_c oder falsches B) zustande gekommen ist.

Bei unserem Experiment wurde jeweils nur ein Wert gefunden, jedoch kann diese Messung keinen großen Beitrag zur Frage des doppelten Wertes für β leisten, weil nur wenige Meßpunkte in dem fraglichen Temperaturbereich ($(T - T_c) < 4\ ^{o}C$) erhalten wurden. Die Dämpfung der Spinrotationsmodulation verhindert genaue Messungen in diesem Temperaturbereich.

Nachzutragen sind in diesem Zusammenhang die Hinweise auf eine stetige Änderung des kritischen Exponenten ohne scharfen Knick im Bereich $|\varepsilon| \leq 10^{-1}$ (Scho74). Die Interpretation dieser Messungen an einer hochauflösenden Magnetisierungswaage sind nicht abgeschlossen, jedoch könnten die Voraussagen von Riedel und Wegner damit bestätigt werden. Offen bleibt allerdings die Frage, warum ein ähnliches Verhalten nicht bei mikroskopischen Messungen beobachtet wird.

VIII.3 Voraussagen der Hyperfeinfeldtheorien

Es ist zu prüfen, ob die gängigen Hyperfeinfeldtheorien Abweichungen für die kritischen Exponenten voraussagen, wenn man Fremdatome ins Gitter implantiert. Dazu soll kurz auf die wichtigsten Mechanismen eingegangen werden, die zu den Hyperfeinfeldern führen. Ausführliche Darstellungen zu diesem Fragenkomplex liefern eine Reihe von Arbeiten (Mar58, FreW62, ShiR68, Ros69, Zei71, Ben71).

VIII.3.1 Ursprung der Hyperfeinfelder

Systematiken der Hyperfeinfelder von Fremdatomen in den Ferromagneten Eisen, Kobalt und Nickel zeigen, daß die Hyperfeinfelder an Fremdatomen aus verschiedenen Regionen des Periodensystems der Elemente auf Grund unterschiedlicher Wechselwirkungen zustande kommen. Der Hamiltonoperator eines im ferromagnetischen Gitter eingebetteten Kernes enthält eine Reihe von Summanden (ShiR68), von

denen die folgenden vier Wechselwirkungen den Hauptanteil am Hyperfeinfeld tragen:

1. Leitungselektronenpolarisation (CEP)
2. Rumpfpolarisation ("Core"-Polarisation CP)
3. Überlapp-Polarisation
4. Orbitaler Magnetismus

Der orbitale Magnetismus liefert bei den seltenen Erden den Hauptbeitrag zum Hyperfeinfeld. Er ist auf den Bahndrehimpuls der Elektronen der 4f-Schale zurückzuführen, der nicht durch das Kristallfeldpotential unterdrückt ist.

Überlapp-Polarisation tritt bei Fremdatomen auf, die räumlich größer sind als die Gitteratome, so daß ihre Elektronenbahnen mit den Bahnen der Gitteratome überlappen (z.B. Edelgase in Ferromagnetika).

Bei den 3d-Übergangselementen liefern die Leitungselektronenpolarisation und die Rumpfpolarisation den weitaus größten Beitrag zum Hyperfeinfeld, denn der Bahndrehimpuls ist durch das Kristallfeld ausgelöscht (L_z ist keine Konstante der Bewegung mehr (Kit68)), und die Spin-Spin-Dipolar-Wechselwirkungen mitteln sich wegen der kubischen Symmetrie zu null. Somit kann man das Hyperfeinfeld als die Summe dieser beiden Beiträge schreiben:

$$\vec{H}_{hf} = -\vec{H}_{CEP} - \vec{H}_{CP} \,. \qquad \text{VIII,1}$$

Nach gängigen Vorstellungen greifen beide Mechanismen über die Fermi-Kontaktwechselwirkung der s-Elektronen am Kernspin an.

Bei der CEP führt die s-d-Austauschwechselwirkung zwischen den weitgehend lokalisierten d-Elektronen und dem s-Leitungsband zu einem Überschuß einer Spinrichtung im Leitungsband am Platz des Fremdatoms. Das Zustandekommen dieser Spinpolarisation wird durch das Modell von Daniel und Friedel (DanF63, Cam69) als s-Wellenstreuung am Potentialtopf des Fremdatoms erklärt.

Bei der Rumpfpolarisation werden am Kernort durch die s-d-Austauschwechselwirkung zwischen dem äußeren d-Spin und inneren s-Schalen ein und desselben Atoms kleine Abweichungen von der ausgewogenen s-Elektronenverteilung des Rumpfes hervorgerufen, so daß sich entgegengesetzte Hyperfeinfelder am Kernort nicht mehr vollständig kompensieren. Hartree-Fock-Rechnungen von Freeman und Watson (FreW61, WatF61) für dieses Modell zeigen recht gute Übereinstimmung mit den Experimenten.

VIII.3.2 Temperaturabhängigkeit der Hyperfeinfelder

Auf die Frage, ob eine strenge Proportionalität zwischen dem Hyperfeinfeld am Kernort des jeweiligen Fremdatoms und der Magnetisierung des Gitters herrscht, gibt es unterschiedliche Antworten.

Untersuchungen an reinen Substanzen, wie z.B. ^{57}Fe in Eisen (PreH62, NagF60) mit Hilfe des Mößbauereffektes, haben eine Proportionalität festgestellt, die nur durch die Volumenänderung des Kristalls gestört wird (vgl. auch StrB63). Erst in neuerer Zeit sind durch die Messungen von Riedi (Rie73) daran Zweifel wach geworden.

Für Fremdatome muß man zwei Fälle unterscheiden. Bei einigen Fremdatomen folgt das Hyperfeinfeld der Magnetisierung des Wirtsgitters, z.B. für Zn in Nickel (BerH74) und für Cd in Nickel (ShiR68), bei anderen dagegen treten starke Abweichungen auf, z.B. Ru in Nickel (ShiR68), Mn in Eisen (KoiT64). Dieses Verhalten kann durch einen unterschiedlichen Ursprung der Hyperfeinfelder erklärt werden. So erwartet man, daß die Temperaturabhängigkeit der CEP streng der Wirtsgittermagnetisierung folgt - bis auf kleine Abweichungen, die von einer Desorientierung der Gitteratome in der Nähe von Fremdatomen herrühren, wie sie von Lovesey und Marshall (LovM66) diskutiert werden. Dieser Fall dürfte bei den nichtmagnetischen Fremdatomen Cu (vgl. Zei71) und Zn (vgl. Ber74) vorliegen.

Wird das Hyperfeinfeld über die CP durch ein mehr oder minder lokales Hüllenmoment des Fremdatoms erzeugt, so gibt es die starken Abweichungen, wie sie für RuNi und MnFe auftreten. Jaccarino et al. (JacW64) haben für diesen Fall ein Modell vorgeschlagen, nach dem das lokale magnetische Moment durch einen Hüllenspin S charakterisiert wird, dessen Erwartungswert $\langle S_z \rangle$ von der Temperatur in dem Maße abhängt, wie es die Ankopplung des Momentes an ein molekulares Austauschfeld H_{ex} im thermischen Gleichgewicht ergibt:

$$\langle S_z \rangle \sim B_S\left(\frac{\xi u_L H_{ex}(T)}{k T}\right) . \qquad \text{VIII,2}$$

$B_S(x)$ ist hierbei die Brillouinfunktion für den Spin S. Das Austauschfeld soll dabei dem Temperaturverlauf der Gittermagnetisierung $\sigma(T)$ folgen:

$$H_{ex}(T) = H_{ex}(0) \frac{\sigma(T)}{\sigma(0)} . \qquad \text{VIII,3}$$

Somit läßt sich die Temperaturabhängigkeit des Hyperfeinfeldes mit der folgenden Beziehung beschreiben (ShiR68):

$$H_{hf}(T) = H_{CEP}(0) \frac{\sigma(T)}{\sigma(0)} + H_{Loc}(0) B_S\left(\xi \frac{T_c}{T} \frac{\sigma(T)}{\sigma(0)}\right) . \qquad \text{VIII,4}$$

Die Proportionalitätskonstante ξ:

$$\xi = \frac{\mu_L H_{ex}(0)}{k T_c} , \qquad \text{VIII,5}$$

soll berücksichtigen, daß die Austauschenergie zwischen dem Fremdatom und dem Gitteratom anders sein kann als die innerhalb des Gitters.

In der Nähe von T_c kann die Brillouinfunktion durch ihr Argument ersetzt werden:

$$H_{hf}(T \to T_c) = \frac{\sigma(T \to T_c)}{\sigma(0)} \cdot \left[H_{CEP}(0) + H_{Loc}(0) \frac{S+1}{3S} \xi \frac{T_c}{T} \right] , \qquad \text{VIII,6}$$

Damit wird also vorausgesagt, daß im kritischen Temperaturbereich das Hyperfeinfeld als Funktion der Temperatur der

Gittermagnetisierung proportional ist, auch wenn das für tiefere Temperaturen nicht der Fall zu sein braucht. Weiterhin wird der kritische Exponent für die Hyperfeinfelder an Fremdatomen unabhängig von der Spinquantenzahl S und dem Kopplungsparameter ξ. Wie die Messungen dieser Arbeit jedoch zeigen, ist die Voraussage der Proportionalität falsch. Hier ergeben sich gerade bei solchen Sondenkernen, deren Hyperfeinfeld bei tieferen Temperaturen der Gittermagnetisierung folgt, große Abweichungen. Damit müssen andere Größen bestimmend für den kritischen Exponenten sein als die, die explizit in den Hyperfeinfeldtheorien auftreten. Verbesserte Ansätze zur Klärung dieser Frage werden in den nächsten Abschnitten diskutiert.

VIII.4 Fremdatome im ferromagnetischen Gitter

VIII.4.1 Modellvorstellungen: Fremdatompotentiale und Momentdesorientierung

In verfeinerten Modellvorstellungen ist das Gitter des Kristalls aus positiv geladenen Ionenrümpfen aufgebaut, deren periodische Potentiale Bandstrukturen im Leiter erzeugen. Die ferromagnetische Kopplung in reinen Ferromagneten hat innerhalb dieser Bänder stattzufinden; man unterscheidet zwei Arten von Kopplung (Cam73, Ste73):

1. die direkte Kopplung, die bei Ferromagneten mit großen d-Zustandsdichten an der Fermikante auftritt (z.B. Fe, Co, Ni). Bei diesen Materialien wechselwirken die zum größten Teil lokalisierten d-Momente mit Hilfe eines kleinen Prozentsatzes nichtlokalisierter d-Elektronen,
2. die indirekte Kopplung, bei der die d-Momente das sp-Band polarisieren und mit Hilfe der Polarisationsoszillation in diesem Band untereinander wechselwirken (bei den Heusler-Legierungen und in ähnlicher Weise bei den seltenen Erden).

Damit wird für die Ferromagneten der Übergangselemente die indirekte Kopplung der RKKY-Theorie, die über das Leitungsband erfolgt, in diesen neuen Modellvorstellungen abgelöst. Die Polarisation des 4s-Leitungsbandes, die natürlich weiterhin auf Grund der s-d-Austauschwechselwirkung vorhanden ist, ist nicht mehr zur Aufrechterhaltung der magnetischen Ordnung nötig.

Werden in das Gitter Fremdatome implantiert, so wird die Periodizität (Translationsinvarianz) gestört. Am Platz des Fremdatoms bildet sich ein lokales kugelsymmetrisches Potential aus, das sich von dem Potential der Gitteratome unterscheidet. Im Modell von Daniel und Friedel (DanF63) wird dieses Potential durch die Bedingung festgelegt, daß die Kernladungsdifferenz zwischen dem Fremdatom und den Gitteratomen durch die gesamte Ladung der um das Fremdatom konzentrierten Elektronen unterhalb der Fermikante kompensiert werden muß. An diesem Potential werden die "freien" Elektronen der Bänder gestreut. Bei den Rechnungen kann man auf die normale Streutheorie zurückgreifen und erhält als Ergebnisse die nach dem Drehimpuls unterschiedenen Zustände, die virtuell gebunden, stark oder schwach lokalisiert sind. Die Art, wie der virtuell gebundene Zustand gebildet wird und sich dann mit verändertem Fremdatompotential in einen delokalisierten Zustand umwandelt, ist für die Übergangselemente im Modell von Campbell (Cam70, Cam73) für Nickel als Wirtsgitter veranschaulicht:
Für eine geringe Potentialdifferenz wird das Fremdatom allein durch Spin↓-Elektronen abgeschirmt; das am Fremdatom vorhandene magnetische Moment, das der Ladungsdifferenz Z proportional ist ($d\mu/dc = -Z$), ist wohllokalisiert. Wird das Fremdatompotential weiter erniedrigt, so müssen oberhalb einer kritischen Differenz, wo alle d↓-Elektronen ausgeschöpft sind, auch d↑-Elektronen herangezogen werden. Diese Übergangszone (die zwischen Mn und Cu, bei Ru und Os liegt) macht sich in einer plötzlichen Richtungsänderung und Delokalisierung des Fremdatommomentes bemerkbar.

Campbell führt dieses Verhalten in seinem Modell auf eine thermische Verschmierung der Fermikante zurück, die am Fremdatom einen Übergang von einem wohllokalisierten Moment zu einem schlecht lokalisierten erzeugt, wenn der virtuell gebundene Zustand auf der Fermikante "sitzt". Das Modell rechnet ferner mit einer starken s-d-Hybridisierung und einer geringeren Dichte von Elektronen an der Fermikante als das Modell von Friedel (Campbell: ∿1/3, Friedel: ∿1). Dadurch hat das CEP-Feld eine negative Richtung (Cam69). Für wachsendes Z leert sich der Zustand weiter und wird stärker lokalisiert. Dieses Bild von Campbell wird sowohl durch Widerstandsmessungen und Hyperfeinmessungen als auch durch Messungen der spezifischen Wärme (CauC73) experimentell bestätigt.

Bei den sp-Fremdatomen wie Cu und Zn, die kein lokales d-Moment besitzen, sondern nur eine Anzahl von "lokalisierten" Elektronen im Leitungsband, unterscheidet sich die Systematik bei Eisen und Nickel. Während für Eisen für alle Fremdatome $d\mu/dc \sim 2.2\mu_B$ ist, d.h. die d-Momentstörung ist um das Fremdatom konzentriert, ist bei Nickel die Abschirmung so weit verteilt, daß auch ein Teil der nächsten d-Momente gestört ist ($d\mu/dc = Z_{eff}$, d.h. CuNi: $d\mu/dc = -1\mu_B$/Atom, ZnNi: $d\mu/dc = -2$ ...)(Cam73).

Die Störung, die die nächsten Nachbarn eines Fremdatoms erleiden, läßt sich schwer abschätzen. Campbell führt dazu an, daß

1. die Hyperfeinfelder an Kernen, die zu Fremdatomen benachbart sind, sowohl von der Momentverteilung um das Fremdatom als auch von der Größe des Momentes abhängen und daß
2. das Hyperfeinfeld am Fremdatom eine Summe aus einem lokalen Anteil der Momentverteilung um das Fremdatom und aus einem langreichweitigen CEP-Anteil der Momente der nächsten Schalen ist. Das bedeutet, daß die CEP eine lineare aber nichtlokale Reaktion auf die d-Momentänderung zeigt.

Somit kann man aus diesem Modell zweierlei lernen:

1. Fremdatome im Gitter bilden lokale Elektronen- und Spindichteverteilungen, die sich sehr wohl von den Verhältnissen im Gitter unterscheiden können (lokaler Spinblock). Dieser Ansatz wird in Kapitel VIII,5 weiter verfolgt.
2. Unter gewissen Voraussetzungen sind diese Spinverteilungen delokalisiert und beeinträchtigen die Spins der benachbarten Wirtsgitteratome (Desorientierung der Nachbarspins).

Beide Ansätze können zu einer Deutung der gemessenen kritischen Exponenten herangezogen werden.

Es soll jetzt auf die Desorientierung der Momente nach dem Modell von Lovesey und Marshall (LovM66) eingegangen werden. Grundlage dieses Modells ist eine Heisenbergwechselwirkung zwischen einem Spin am Gitterplatz R und seinen Nachbarspins, die in Form einer Gittersumme über die Erwartungswerte der Spins berücksichtigt wird. Die Störung, die ein unmagnetisches Fremdatom auf seine Umgebung ausübt, äußert sich in Momentauslenkungen seiner Nachbarspins, so daß die effektive "Magnetisierung" am Gitterplatz R verkleinert wird. Die Momentauslenkungen selbst werden durch Selbstkonsistenz-Bedingungen festgelegt. In das Ergebnis gehen neben der Spinquantenzahl S des Gitters die Austauschwechselwirkungsstärke und die Anzahl der Nachbarn ein, so daß die Störung gitterabhängig ist.

VIII.4.2 Einfluß auf den kritischen Bereich

Der Einfluß der Fremdatome auf das Verhalten der Hyperfeinfelder im kritischen Bereich kann durch jedes der drei vorhergehenden Modelle berücksichtigt werden:

1. Der gesamte Ausdruck der Gleichung VIII,8 wird ausgerechnet, ohne die Brillouinfunktion zu ersetzen.
2. Der Einfluß magnetischer Fremdatome wird mit Hilfe des Modells von Campbell berücksichtigt.
3. Das Modell von Lovesey und Marshall gibt das Temperaturverhalten der Hyperfeinfelder an unmagnetischen Fremdatomen an.

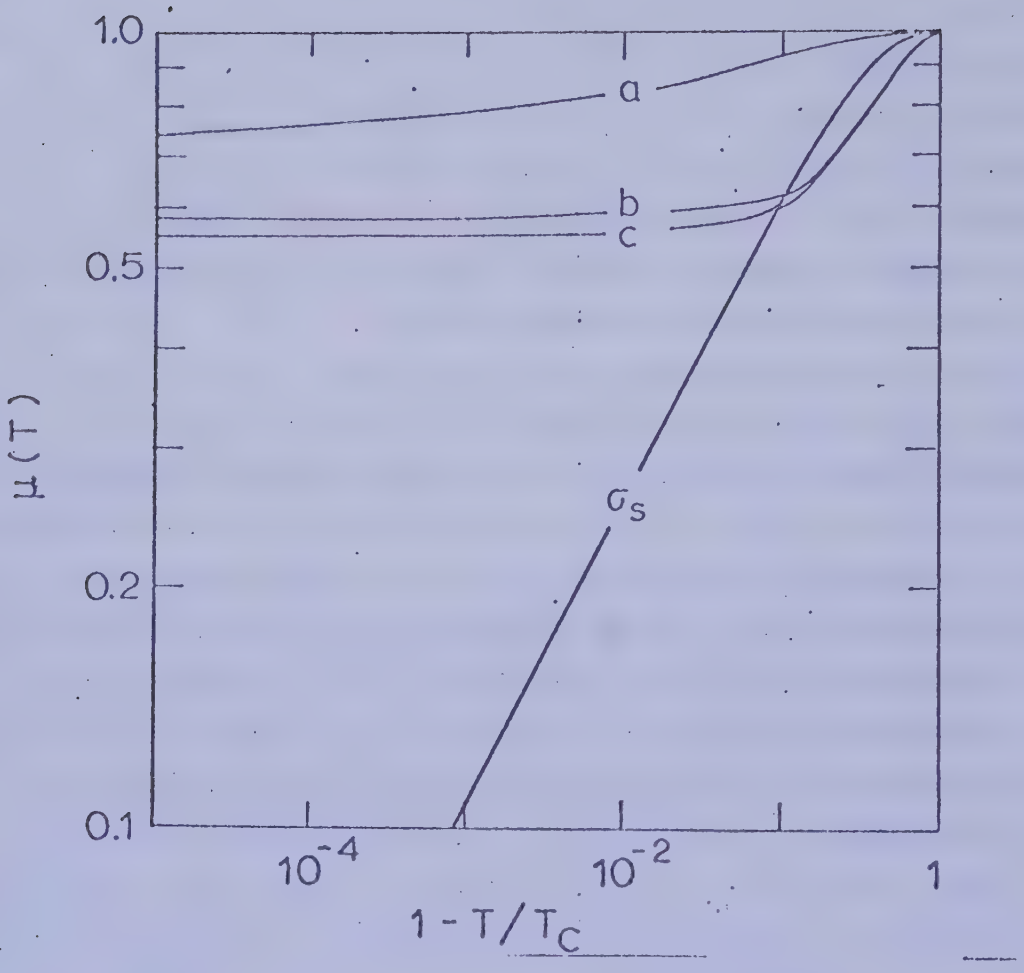


Abb. 23: Verhalten von μ(T) bei steigender Temperatur nach Hohenemser (Hoh74).

μ(T) ist definiert als das Verhältnis von Hyperfeinfeld zur Gittermagnetisierung ($\mu(T) \sim H_{hf}(T)/\sigma(T)$ bei T = 0 K auf 1 normiert). Die Rechnungen gelten für folgende Modelle:

a) Modell von Lovesey und Marshall für unmagnetische Fremdatome
b) Modell von Jaccarino et al. mit Werten von Shirley et al. für RuNi
c) Modell von Campbell mit Parametern von RuNi.

Zur Orientierung ist die Magnetisierung von Nickel σ_s eingezeichnet (aus Hoh74).

Für diese drei Modelle wurden Abschätzungen von Hohenemser vorgenommen (Hoh74), die in der Abbildung 23 dargestellt sind. Aufgetragen ist dabei das Verhältnis $\mu(T)$ vom Hyperfeinfeld $H_{hf}(T)$ zur Gittermagnetisierung $\sigma_S(T)$. Mit den Parameterwerten von Shirley et al. (ShiR68) für Ru in Nickel ergibt sich für die ersten beiden Modelle im kritischen Temperaturbereich nur eine geringe Temperaturabhängigkeit für $\mu(T)$, die nach den Angaben von Hohenemser β nur um 0.5% verändern kann ($10^{-4} < |\varepsilon| \leq 10^{-2}$). Für unmagnetische Fremdatome im Nickelgitter sollte die Änderung von β 5% nicht überschreiten, wenn man nur die Desorientierung der nächsten Nachbarmomente berücksichtigt. Nimmt man mit Hohenemser für reines Nickel $\beta = 0.38 - 0.39$ an, dann liegen die mit den Fremdatomen Ta, Cu, Zn gefundenen Werte noch innerhalb dieser erlaubten Variationsbreite von 5%. Die großen Abweichungen, die in dieser Arbeit zwischen ^{63}NiNi und ^{67}ZnNi gefunden wurden, gehen jedoch weit über die durch diese Gittermomentdeviationen vorausgesagten Änderung des kritischen Exponenten hinaus. Nicht verstanden bleibt auch das "normale" Verhalten von ^{111}CdNi, wobei Kadmium auch als unmagnetisches Fremdatom anzusehen ist (Tabelle 16).

Es ist nicht klar, wieweit diese Modelle, die alle für die Fremdatom-Gitterwechselwirkung eine Molekularfeldnäherung ansetzen, die Situation im Gitter richtig widerspiegeln. Abzuwarten sind deshalb die Ergebnisse einiger Rechnungen, die mit quantenmechanischen Wechselwirkungen im Gitter durchgeführt werden (Hoh74a).

VIII.5 Deutung des kritischen Exponenten β in Modellvorstellungen des Phasenübergangs

Die vorhergehenden Abschnitte zeigen deutlich, daß die Deutung der hier gemessenen kritischen Exponenten deshalb so schwierig ist, weil sich zwei Fragestellungen überkreuzen: Der magnetische Phasenübergang und die Hyperfeinwechselwirkungen. Da beide Fragestellungen noch nicht bis zur

endgültigen Klarheit gelöst sind, ist die Erklärung der kritischen Exponenten, die hier angeführt werden soll, zum größten Teil spekulativ. Sie läuft in die richtige Richtung, quantitativ ist sie aber noch mit einigen Fragen behaftet. Wir knüpfen an die Überlegungen im Kapitel II an und betrachten für die Fälle der kurzreichweitigen Wechselwirkung nur die Spindimension D, da man die Gitterdimension als konstant d = 3 annehmen kann.

Rechnungen für die Abhängigkeit des kritischen Exponenten β von der Spindimension D (bzw. den Freiheitsgraden n) sind von Stanley et al. (StaH71) und von Brézin et al. (BréW72, BréW73) durchgeführt worden. Die Rechenergebnisse sind in der Abbildung 24 graphisch dargestellt.

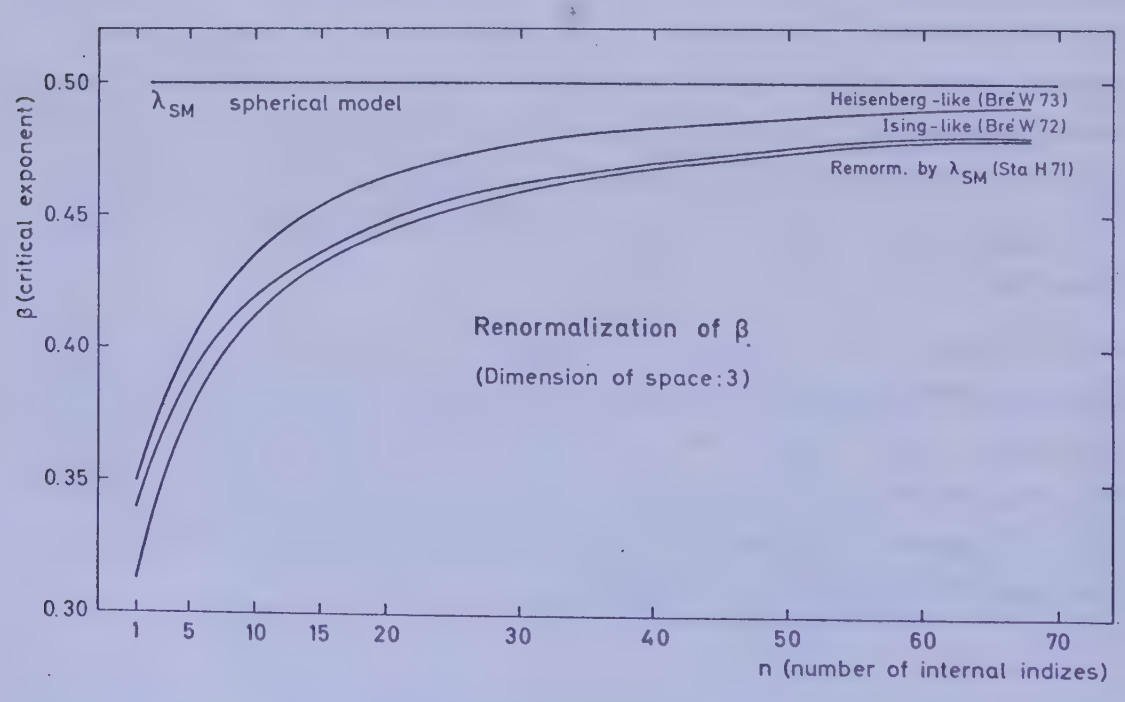


Abb. 24: Änderung von β mit der Anzahl der internen Freiheitsgrade n bzw. der Spindimension D(die Skala für n gilt auch für D). Die Kurven wurden nach Brézin et al. und Stanley et al. ausgerechnet (vgl. Kap. II und Tabellen 2 und 3).

In diesem Diagramm gelten die Zahlen für n auch für die Spindimension D. Die Rechnungen von Stanley, semiempirischer Art, sind an bekannte Werte für den dreidimensionalen Ising- und Heisenbergferromagneten angepaßt worden.

Um auch die Abhängigkeit des kritischen Exponenten β von der Gitterdimension zu veranschaulichen, zeigt die Abbildung 25 die Vorhersage für ein Ising-gekoppeltes Spinfeld nach Brézin et al. mit n als Parameter. Bei Gitterdimensionen, die größer als 4 sind, ergeben sich konstant

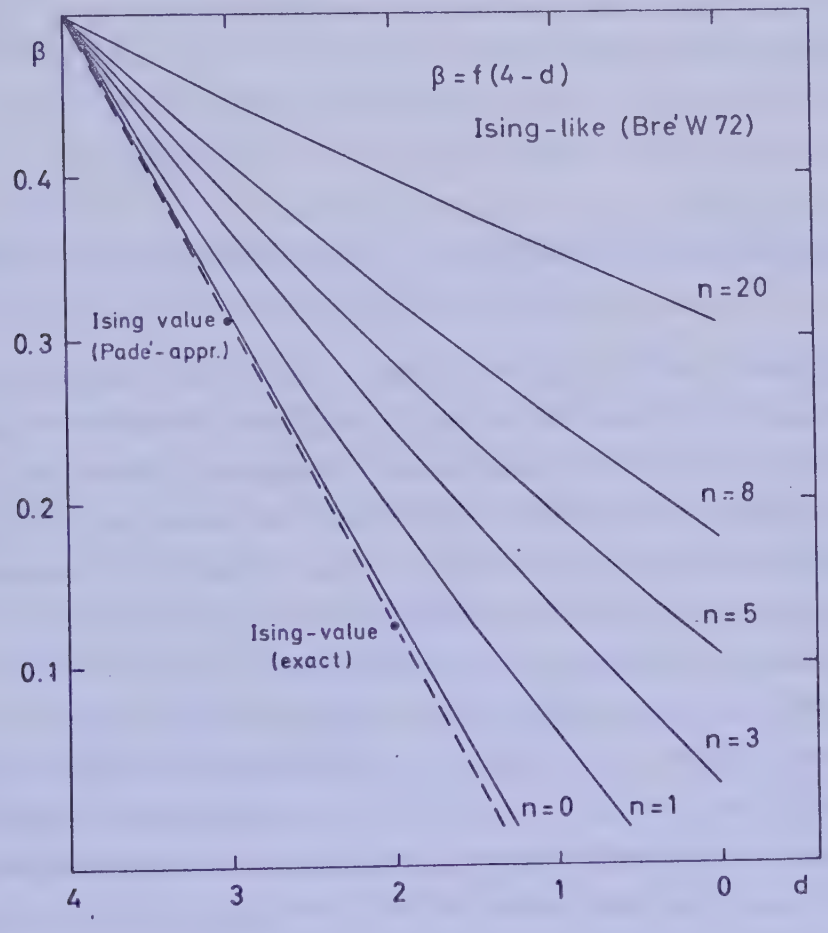


Abb. 25: Änderung von β mit fallender Gitterdimension d nach dem Modell von Brézin et al.. Als Parameter tritt n, die Anzahl der internen Freiheitsgrade, auf. Zum Vergleich sind die Ising-Werte für einen zweidimensionalen Magneten (Ons44) und der Näherungswert für einen dreidimensionalen (EssF63) eingezeichnet. Die Kurven sind nur als Näherungen zu verstehen (das Modell gilt nur für (4-d)→0!).

die Werte des sphärischen Modells. Hinzuzufügen ist allerdings, daß alle diese Rechnungen streng nur im Grenzfall $d \to 4$ gelten, so daß sie quantitativ für niedrigere Dimensionen falsch sind. Eingezeichnet sind weiterhin die Werte für einen zweidimensionalen Ising-Ferromagneten ($d = 2$, exakte Rechnung) und für einen dreidimensionalen ($d = 3$, Padé-Approximation).

Damit bieten die Modelle die Möglichkeit, alle kritischen Exponenten zwischen 0.312 und 0.5 durch die Variation von D bzw. n zu erklären. Das soll hier qualitativ geschehen. Unser Wert für Ni in Nickel ($\beta = 0.32(2)$) stimmt recht gut mit dem Wert für den Ising-Ferromagneten überein. Das ist nur eine Feststellung; wieweit sie mit weiteren Aussagen über eine eventuell vorhandene Anisotropie der Austauschwechselwirkung oder entgegen der Universalitätshypothese einer Abhängigkeit der Spinquantenzahl $S = 1/2$ für Nickel (Kit68) verknüpft werden kann, erscheint bei weitem spekulativ und soll deshalb offen bleiben.

Für CuNi ($\beta = 0.425(50)$ und ZnNi ($\beta = 0.425(25)$ wandelt sich das Bild. Da die Sondenkerne in großer Verdünnung auftreten, so daß keine Wechselwirkung zwischen ihnen auftreten kann und sich andererseits das gesamte übrige Nickelgitter in seinem Verhalten nicht von NiNi unterscheiden sollte, müssen die kritischen Exponenten der Fremdatome ein lokales begrenztes Verhalten widerspiegeln. Versuchen wir also die kritischen Exponenten von CuNi und ZnNi durch ein Spinfeld zu erklären, so müssen wir Spindimensionen annehmen, die größer als $D = 3$ sind. Damit verliert das Bild völlig seine Anschaulichkeit, und es liegt nahe, diese durch die Annahme eines kollektiven Verhaltens einer lokalen Spinwolke wiederzugewinnen. Im Falle TaNi könnte dieselbe Argumentation herangezogen werden.

Bei RhNi und FeNi liegen sicherlich lokalisierte Spins vor. Offensichtlich braucht man eine geringere Spindimension, um diese kritischen Exponenten zu erklären, als es für die unmagnetischen Fremdatome der Fall ist, jedoch ist die Spindimension eindeutig größer als für den Ising-Fall.

Festzuhalten bleibt also, daß bei mikroskopischen Messungen ohne weiteres lokale magnetische Strukturen auftreten können, die sich in ihrem Verhalten deutlich vom Gitter unterscheiden. Folgt man neueren theoretischen Modellen, so ist das auf eine Erhöhung der Spindimension oder der inneren Freiheitsgrade dieses Systems gegenüber dem Wirtsgitter zurückzuführen.

Zu bemerken ist zum Schluß, daß die Anwendung der Renormierungsmodelle auf das Verhalten der Magnetisierung am Fremdatom eine Verallgemeinerung in sich trägt, die zu prüfen die Theoretiker aufgerufen sind. Die Frage lautet: Ist es erlaubt, lokale Spinwolken zu konstruieren und durch dieselben Spinfelder oder Spin-Spin-Wechselwirkungen zu beschreiben wie ungestörte Gitter?

VIII.6 Schlußbemerkungen: Kritik des Experimentes und Vorschlag weiterer Experimente

Keine der bisher bekannten Meßmethoden zur Bestimmung von β kann den Anforderungen des idealen Versuchsaufbaus, der Bestimmung der makroskopisch zu messenden Magnetisierung ohne extern angelegtes Magnetfeld, nachkommen. Wie das Ergebnis unserer Messung zeigt, hat sich auch die Hoffnung, mit Hilfe von Hyperfeinfeldern die Magnetisierung zu messen, als nicht uneingeschränkt erfüllbar erwiesen. Die bisher angenommene Konstanz des Verhältnisses von Hyperfeinfeld und Gittermagnetisierung gilt für Fremdatome im Nickel nicht uneingeschränkt und könnte auch für reine magnetische Materialien Einschränkungen unterliegen. Die Abweichungen der kritischen Exponenten bei Benutzung verschiedener Fremdatome könnte für unterschiedliche ferromagnetische Mechanismen signifikant sein,und es sollten deshalb sorgfältige Analysen der Daten, der Versuchsbedingungen und der theoretischen Ansätze folgen. Dazu sollen diese Schlußbemerkungen beitragen. Die konstruktive Kritik am Experiment gliedert sich in drei

Fragen:

1. Ist die Definitionsgleichung für β in der Form der Gleichung II,7 ohne Einschränkung gültig?
   (Kann man das Verhalten der Magnetisierung im kritischen Bereich mit einem einzigen temperaturunabhängigen Exponenten beschreiben?)
2. Sind mikroskopische Meßtechniken zur Bestimmung von β erlaubt?
   (Haben verschiedene Meßmethoden unterschiedliche Empfindlichkeit bezüglich der im ferromagnetischen Gitter vorhandenen Wechselwirkungen und Domänenstrukturen?)
3. Sind "In-Beam"-Messungen erlaubt?
   (Kann man den störenden Einfluß, den die Meßmethode auf die Mikrostruktur hat, vernachlässigen?)

Im folgenden soll dazu etwas gesagt werden.

Bei der Anwendung des Formalismus der kritischen Exponenten auf Phasenübergänge zweiter Ordnung wird angenommen, daß sich die Temperaturabhängigkeit der Zustandsgrößen durch ein Exponentengesetz beschreiben läßt, bei dem der jeweilige kritische Exponent im gesamten kritischen Bereich eine temperaturunabhängige Konstante sein soll. Es gibt jedoch einige schwache Hinweise, daß solch eine einfache Beziehung für den Exponenten β nicht richtig sein könnte: Der doppelte Wert von β, den einige Autoren erhalten haben und einige mündlich weitergegebene Meßergebnisse könnten den Schluß nahe legen, daß der kritische Exponent β keine Konstante, sondern eine sich mit der Temperatur ändernde Größe ist. Nicht klar ist, wieweit dieses im Experiment beobachtete Verhalten dadurch hervorgerufen werden kann, daß man das als kritischen Bereich angenommene Temperaturgebiet zu weit vom Curiepunkt entfernt beginnen läßt. Für β setzen bisherige Modellvorstellungen den kritischen Bereich zwischen $4 \cdot 10^{-2} \geq |\varepsilon| \approx 0$ an (vgl. Abbildung 26) (JonM74), jedoch könnte er für die Hyperfeinfelder (besonders für die an Fremdatomen) enger zu fassen sein. Solange allerdings für Hyperfeinfeldmessungen eindeutige Kriterien fehlen, die zur Festlegung des kritischen Bereiches herangezogen werden können, muß diese Frage offen bleiben.

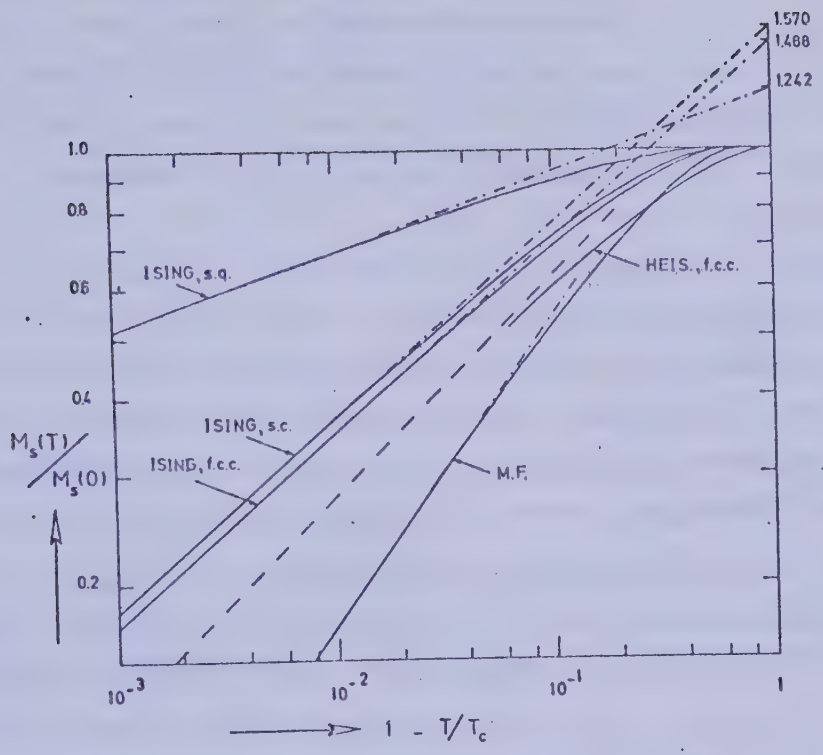


Abb. 26: Vorhersagen verschiedener Modelle für das Temperaturverhalten der Magnetisierung nach Wielinga (aus JonM74).
Ein linearer Verlauf entspricht der Formel $M \sim (1-T/T_c)^{\beta}$.

Weiterhin kann man Überlegungen über die experimentelle Bestimmung von T_c anstellen. Der Curiepunkt T_c wird in den Anpassungen und Extrapolationen als für die jeweilige Probe feste Größe angenommen, die durch den Übergang $M_S(T) \to 0$ festgelegt ist. T_c braucht aber nicht über den gesamten Kristall einheitlich zu sein, sondern in lokalen Bereichen können durchaus voneinander verschiedene Curietemperaturen herrschen (Hel67). Damit ist das aus den Extrapolationen gewonnene T_c, das für die gesamte Probe gelten soll, unscharf, und die Unschärfe überträgt sich auf alle ε-Werte.

Die Definitionsgleichung für β wird trotzdem weiterhin als richtig angenommen, weil zur Revision der Vorstellungen weder diese Messungen noch die bisher bekannten experimentellen Ergebnisse ausreichen.

Die zweite Frage betrifft die mikroskopische Meßtechnik. Die Anwendung dieser Meßtechnik scheint dann gerechtfertigt zu sein, wenn der Sondenkern Baustein des Gitters ist, etwa bei Fe in Eisen oder auch Mn in MnF_2. In diesen Fällen erwartet man kaum Abweichungen von makroskopischen Messungen, weil

1. das Gitter in seinem Aufbau durch den Sondenkern nicht gestört wird und weil
2. das Meßergebnis aus einer großen Anzahl von Signalen zusammengesetzt wird, die von vielen Stellen des Kristalls ausgesendet werden, so daß über zufällig auftretende Störungen gemittelt werden kann.

Beim Einbau von Fremdatomen als Sondenkerne sind die Störungen systematischer Art: Die Periodizität und die Symmetrie im Kristall sind aufgehoben. Der Einfluß solcher Störungen erstreckt sich sowohl auf die Elektronendichte als auch auf die Spindichte in der Nähe des Fremdatoms. Man erhält Ergebnisse, die sowohl von dem Fremdatom als auch vom Gitter abhängen. Systematische Untersuchungen zu diesem Problem liefern die Implantationsmessungen von Bartsch et al. (BarL74). Fremdatome im Gitter bilden ein selbständiges an das ungestörte Gitter angekoppeltes System, dessen Verhalten von dem des Gitters abweichen kann. Ein Beispiel dafür sind die kritischen Exponenten β von Fremdatomen in Nickel: Der kritische Exponent einer "Elektronenwolke" um die Fremdatome Cu und Zn in Nickel unterscheidet sich von dem im reinen Nickel. Fremdatome dürfen also nicht zur Untersuchung des ungestörten Gitters herangezogen werden.

Bei Untersuchungen mit Hilfe isomerer Niveaus definiert die endliche Lebensdauer des Zustandes ein Zeitfenster, das nur zeitlich fluktuierende Prozesse in der Größenordnung derselben Zeitdauer erfaßt. Es entgehen somit Fluktuationen mit zu langer und zu kurzer Korrelationszeit.

Die größten Bedenken richten sich gegen die Messung im Beschleunigerstrahl. Neben der relativ großen Temperatur-

instabilität muß man dabei einige Nachteile in Kauf nehmen, die direkt das Gitter verändern:

1. Es werden Störstellen im Gitter erzeugt, und
2. Wasserstoff bzw. Helium wird durch den Beschleunigerstrahl in das Target eingepflanzt.

Somit liegt die Befürchtung nahe, daß sich der Charakter der magnetischen Wechselwirkung gegenüber dem ungestörten Gitter ändert (Anisotropie der Wechselwirkung durch Fehlstellen? Domänenzersplitterung? Gitteraufweitung?). Ohne weitere genauere Untersuchungen kann deshalb nicht gesagt werden, wieweit die Störungen, die sich in den Spinrotationsspektren andeuten, auch für den kritischen Exponenten Ergebnisse liefern, die sich vom ungestörten Gitter unterscheiden. Somit sind die Meßergebnisse dieser Arbeit bis zur Klärung dieser Frage mit dieser Einschränkung weiterzugeben.

Aus der Diskussion dieser Arbeit gehen eine Reihe von Vorschlägen für weitere Experimente hervor. Als wichtigste Experimente zur Festigung der Meßergebnisse dieser Arbeit sind Messungen mit den Sonden Fe, Rh, Ta und Cd vorzunehmen, deren isomere Niveaus mit Hilfe einer Kernreaktion angeregt werden, um zu untersuchen, ob sich Unterschiede zu den Experimenten ergeben, die an denselben Zuständen mit Mößbauer- oder Winkelkorrelationsexperimenten durchgeführt wurden.

Weiterhin sind Messungen an Legierungen wie $^{65}Cu^{62}Ni$ oder $^{110}Cd^{62}Ni$ zu nennen, bei denen gleichzeitig mit (d,p)-Kernreaktionen isomere Niveaus in den beiden Partnern angeregt werden können. Wenn nicht Clusterbildung in diesen Legierungen die Untersuchungen erschweren, kann mit solchen Messungen das Verhalten von ß und der Amplitude B als auch von T_c an beiden Komponenten der Legierung in Abhängigkeit von der Konzentration eines Partners untersucht werden.
Über diese Experimente hinaus ist die Systematik der Fremdatom-Wirtsgittersysteme auf die seltenen Erden, p-Elemente und Edelgase zu erweitern, um Aufschluß über die Temperaturabhängigkeit des Bahnmagnetismus und der Überlapp-

Polarisation zu erhalten.

Auch eine Erweiterung auf andere Ferromagnetika als Nickel scheint angebracht zu sein; denn die Störung der nächsten Nachbarn von unmagnetischen Fremdatomen ist in Eisen kleiner als in Nickel (Cam73). Das System CuCo verdient in diesem Zusammenhang Aufmerksamkeit, weil das 3^+-Niveau des ^{62}Cu im Kobalt direkt über eine (α, n)-Kernreaktion erzeugt werden kann.

Literaturverzeichnis

bbr62 A. Abragam, The Principles of Nuclear Magnetism, London 1962

AbrP53 A. Abragam and R. Pound, Phys. Rev. 92 (1953) 943

AhaF73 A. Aharony and M.E. Fisher, Phys. Rev. B8 (1973) 3342

Ald52 K. Alder, Helv. Phys. Acta 25 (1952) 235

AldS64 K. Alder, R. Steffen, Ann. Rev. Nucl. Sci. 14 (1964) 403

AndA71 E.E. Anderson, S. Arajs, A.A. Stelmach, B.L. Tehan, and Y.D. Yao, Phys.Lett. 36A (1971) 173

AraT70 S. Arajs, B.L. Tehan, E.E. Anderson and A.A. Stelmach, Phys. Stat. Sol. 41 (1970) 639

Arr71 A. Arrot, J. Appl. Phys. 42 (1971) 1282

ArrN67 A. Arrot and J.E. Noakes, Phys. Rev. Lett. 19 (1967) 786

Asa63 K. Asayama, J. Phys. Soc. (Japan) 18 (1963) 1727

BakR68 H.K. Bakker, M.T. Rekveldt and J.J. Van Loef, Phys. Lett. 27A (1968) 69

BalB74 E. Baltrusch, J. Bleck, S.S. Rosenblum and W.D. Zeitz, Nucl. Instr. Methods 114 (1974) 385

Ban70 M.H. Bancroft, Phys. Rev. B2 (1970) 182

BarL74 W. Bartsch, W. Leitz, H.-E. Mahnke, W. Semmler, R. Sielemann, and Th. Wichert, Contr. Paper to the International Conference on Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Uppsala, 10. - 14. Juni 1974

Ben71 C. Benski, Dissertation, Brandeis University, 1971

Ben73 K.H. Bennemann, private Mitteilung

BenR72 H.C. Benski, R.C. Reno, C. Hohenemser, R. Lyons, and C. Abeledo, Phys. Rev. B6 (1972) 4266

Ber74 H. Bertschat, Dissertation, Freie Universität Berlin, 1974

BerH74 H. Bertschat, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel, E. Schlodder, B. Spellmeyer, Z. Phys. 267 (1974) 299

BerK52 T.H. Berlin and M. Kac, Phys. Rev. 26A (1968) 267

BerL73 H. Bertschat, U. Leithäuser, K.H. Maier, E. Recknagel, and B. Spellmeyer, Nucl. Phys. A215 (1973) 486

Bie66 J. Biersack, Berechnung von Rückstoßweiten, Interner Bericht, MHI Kernchemie, Berlin 1966

Ble67 J. Bleck, Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, 1967

Ble70 J. Bleck, Dissertation, Freie Universität Berlin, 1970

BleB72 J. Bleck, R. Butt, K.H. Lindenberger, W. Ribbe, and W. Zeitz, Nucl. Phys. A197 (1972) 620

BleB73 J. Bleck, R. Butt, K.H. Lindenberger, W. Ribbe, and W. Zeitz, Z. Phys. 263 (1973) 169

BleH69 J. Bleck, D.W. Haag, W. Leitz, R. Michaelsen, W. Ribbe, and F. Sichelschmidt, Nucl. Phys. A123 (1969) 65

BleM70 J. Bleck, R. Michaelsen, W. Ribbe, and W. Zeitz, Phys. Lett. 32B (1970) 41

BleM71 J. Bleck, R. Michaelsen, W. Ribbe, and W.D. Zeitz, in Hyperfine Interactions in Excited Nuclei, ed. G. Goldring and R. Kalish, New York 1971, p.110

BosK70 L. Boström, E. Karlsson and S. Zetterlund, Phys. Scripta 2 (1970) 65

Boz68 R.M. Bozorth, Ferromagnetism, Toronto, London, Melbourne 1968

BréW72 E. Brézin, D.J. Wallace, K.G. Wilson, Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 591

BréW73 E. Brézin, D.J. Wallace, K.G. Wilson, Phys. Rev. B7 (1973) 232

But72 R. Butt, Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, 1972

Cam69 I.A. Campbell, J. Phys. C 2 (1969) 1338

Cam70 I.A. Campbell, J. Phys. C 3 (1970) 2151

Cam73 I.A. Campbell, Alloys and Hyperfine Fields, Course Notes for the Winter School at Zakopane, Febr. 1973, unveröffentlicht

CauC73 R. Caudron, R. Caplain, J. Meunier, and P. Costa, Phys. Rev. B8 (1973) 5247

Cha52 C.H. Chang, Phys. Rev. 88 (1952) 1422

ChrR66 J. Christiansen, E. Recknagel, and G. Weyer, Phys. Lett. 20 (1966) 46

ChrM70 J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, D. Riegel, G. Weyer, and W. Witthuhn, Phys. Rev. C1 (1970) 613

DalW69 N.W. Dalton and D.W. Wood, J. math. Phys. 10 (1968) 1271

DanF63 E. Daniel and J. Friedel, J. Phys. Chem. Solids 24 (1963) 1601

DarG53 L.S. Darken, R.W. Gurry, Physical Chemistry of Metals, New York 1953

ErgV65 C. Erginsoy, G.H. Vineyard and A. Shimizu, Phys. Rev. 139 (1965) A 118

EssF63 G.W. Essam and M.E. Fisher, J. Chem. Phys. 38 (1963) 802

Fer65 A.J. Ferguson, Angular Correlation Methods in Gamma-Ray Spectroscopy, Amsterdam 1965

Fis67 M.E. Fisher, Rep. Prog. Phys. 30II (1967) 615

FraS64 H. Frauenfelder and R.M. Steffen, in Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, ed. K. Siegbahn, Chap XIX, Amsterdam 1964

FreW61 A.J. Freeman and R.E. Watson, Phys. Rev. 123 (1961) 2027

FreW62 A.J. Freeman and R.E. Watson, Hyperfine Fields in Magnetic Materials, Proc. of the Second International Conf. on the Mößbauer-Effekt, ed. D.M.J. Compton and A. Schoen, New York, London 1962, p. 117

Gab69 H. Gabriel, Phys. Rev. 181 (1969) 506

Gab74 H. Gabriel, private Mitteilung

GabB71 H. Gabriel and J. Bosse, Angular Correlation Perturbed by Dynamic Actions with the Environment, in Angular Correlations in Nuclear Disintegration, ed. H. van Krugten and B. van Nooijen, Rotterdam 1971, p. 394

Gen73 P.G. de Gennes, Theory of Neutron Scattering by Magnetic Crystals, in Magnetism III, ed. G.T. Rado and H. Suhl, New York and London 1963, p. 115 f

Gri65 R.B. Griffiths, Phys. Rev. Lett. 14 (1965) 623

Gri70 R.B. Griffiths, Phys. Rev. Lett. 24 (1970) 1479

Gum70 D. Gumprecht, Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, 1970

GumS71 D. Gumprecht, P. Steiner, G. Crecelius and S. Hüfner, Phys. Lett. 34A (1971) 79

Hel67 P. Heller, Rep. Prog. Phys. 30 (1967) 731

HelB65 P. Heller and G. Benedek, Phys. Rev. Lett. 14 (1965) 71

HilJ65 B.J. Hiley and G.S. Joyce, Proc. phys. Soc. 85 (1965) 493

Hoh74 C. Hohenemser, Contributed Paper to the International Conference on Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Uppsala, 10. - 14. Juni 1974

Hoh74a C. Hohenemser, private Mitteilung

HohR69 C. Hohenemser, R. Reno, H.C. Benski, and J. Lehr, Phys. Rev. 184 (1969) 298

HowD65 D.G. Howard, B.D. Dunlap and J.G. Dash, Phys. Rev. Lett. 15 (1965) 628

Isi25 E. Ising, Z. Phys. (1925) 253

JacW64 V. Jaccarino, L.R. Walker, and G.K. Wertheim, Phys. Rev. Lett. 13 (1964) 752

JasW68 D. Jasnow and M. Wortis, Phys. Rev. 176 (1968) 739

JonM74 L.J. de Jongh and A.R. Miedema, Experiments on simple magnetic model systems, Adv. in Phys. 23 (1974) Vol. 1

Joy66 G.S. Joyce, Phys. Rev. 146 (1966) 349

KacG74 T. Kachnowski, A.M. Gottlieb and C. Hohenemser, Contributed Paper to the International Conference on Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Uppsala, 10. - 14. Juni 1974

Kad66 L.P. Kadanoff, Physics 2 (1966) 263

KadG67 L.P. Kadanoff, W. Götze, D. Hamblen, R. Hecht, E.A.S. Lewis, V. Palciauskas, M. Rayl, J. Swift, D. Aspnes and J. Kane, Rev. Mod. Phys. 39 (1967) 395

KarW72 E. Karlsson, R.A. Windahl and D.W. Cruse, The Applicability of Perturbed Angular Correlation in Magnetism, UUIP-789, Uppsala University, Mai 1972

Kit68 C. Kittel, Einführung in die Festkörperphysik, München und Wien 1968

KosS71 T.A. Koster and D.A. Shirley, Table of Hyperfine Fields, in Hyperfine Interactions in Excited Nuclei, ed. by G. Goldstein and R. Kalish, New York, London, Paris, 1971

KoiT64 Y. Koi, A. Tsujimura, and T. Hikara, J. Phys. Soc. Japan 19 (1964) 1493

KouC68 J.S. Kouvel and J.B. Comley, Phys. Rev. Lett. 20 (1968) 1237

KouR67 J.S. Kouvel and D.S. Rodbell, Phys. Rev. Lett. 18 (1967) 215

LanK69 H. Lange, R. Kohlhaas, W. Rocker, Forschungsberichte des Landes Nordrhein-Westfalen , Nr. 1992, Köln und Opladen 1969

LovM66 S.W. Lovesey and W. Marshall, Proc. Phys. Soc. 89 (1966) 613

Mah70 H.-E. Mahnke, Dissertation, Freie Universität Berlin, 1970

Mar58 W. Marshall, Phys. Rev. 110 (1958) 128

ManS73 C.N. Manikopoulos, P. Sheng, and T.R. Carver, Pyhs. Rev. B8 (1973) 1131

MatR65 E. Matthias, S.S. Rosenblum, and D.A. Shirley, Phys. Rev. Lett. 14 (1965) 46

MiyY70 K. Miyatani and K. Yoshikawa, J. Appl. Phys. 41 (1970) 1272

Mor64 T. Moriya, J. Phys. Soc. (Japan) 19 (1964) 681

Mic70 R. Michaelsen, Dissertation, Freie Universität Berlin, 1970

NagF60 D.E. Nagle, H. Frauenfelder, R.D. Taylor, D.R.F. Cochran, and B.T. Matthias, Phys. Rev. Lett. 8 (1960) 364

NoyA58 H. Noya, A. Arima, H. Horie, Supp. Prog. Theor. Phys. 8 (1958) 33

ObeW61 F.E. Obenshain and H.F. Wegener, Phys. Rev. 121 (1961) 1344

OboO67 T. Obokata, I. Ono, and T. Oguchi, J. Phys. Soc. Japan 23 (1967) 516

OddB73 J.L. Oddou, J. Berthier and P. Peretto, Phys. Lett. 45A (1973) 445

Ons44 L. Onsager, Phys. Rev. 65 (1944) 117

PasB65 L. Passel, K. Blinowski, T. Brun and P. Nielsen, Phys. Rev. 139 (1965) A1866

PauS71 G. Paul and H.E. Stanley, Phys. Lett. 37A (1971) 347

PauS72 G. Paul and H.E. Stanley, Phys. Rev. B5 (1972) 2578

Pre67 R.S. Preston, Phys. Rev. Lett. 19 (1967) 75

Pre68 R.S. Preston, J. Appl. Phys. 39 (1968) 1231

PreH62 R.S. Preston, S.S. Hanna, and J. Heberle, Phys. Rev. 128 (1962) 2207

RayW68 M. Rayland and P.J. Wojtowicz, Phys. Lett. 28A (1968) 142

Rek72 M.T. Rekveldt, Dissertation, Technische Hoogeschool Delft, 1972

Ren70 R.C. Reno, Dissertation, Brandeis Unversity, 1970

RenH70 R.C. Reno and C. Hohenemser, Phys. Lett. 25 (1970) 1007

Rib70 W. Ribbe, Dissertation, Freie Universität Berlin, 1972

Rie73 P.C. Riedi, Phys. Rev. B8 (1973) 5243

RieW69 E. Riedel and F. Wegener, Z. Phys. 225 (1969) 195

Ros69 S.S. Rosenblum, Dissertation, University of California, Berkeley 1969

Ros74 S.S. Rosenblum, private Mitteilung

Rus63 G.S. Rushbrooke, J. Chem. Phys. 39 (1963) 842

Scho74 H.W. Schopgens, private Mitteilung auf der Arbeitstagung der Arbeitsgemeinschaft Magnetismus der DPG in Braunschweig, Juni 1974

SenB66 S.D. Senturia and G.B. Benedek, Phys. Rev. Lett. 17 (1966) 475

Shi71 V.S. Shirley, Table of Nuclear Moments in Hyperfine Interactions in Excited Nuclei, ed. by G. Goldring and R. Kalish, New York, London, Paris, 1971

ShiR68 D.A. Shirley, S.S. Rosenblum and E. Matthias, Phys. Rev. 138 (1968) A170

Sta71 H.E. Stanley, Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena, Oxford 1971

StaH71 H.E. Stanley, A. Hankey and M.H. Lee in Proc. Varenna summer school on critical phenomena, ed. M.S. Green, New York 1971

Ste73 M.B. Stearns, Phys. Rev. B8 (1973) 4383

SteF64 R.M. Steffen and H. Frauenfelder, Perturbed Angular Correlations, Chap. I, Amsterdam 1964

StrB63 R.L. Streever and L.H. Bennett, Phys. Rev. 131 (1963) 2000

VicJ70 M. Vicentini-Missoni, R.I. Joseph, M.S. Green, J.M.H. Leveltsengers, Phys. Rev. B5 (1970) 2312

Waa74 H. de Waard, private Mitteilung

WatF61 R.E. Watson and A.J. Freeman, Phys. Rev. Lett. 6 (1961) 277

WeiF26 P. Weiss, R. Forrer, Ann. d. Phys. 15 (1926) 153

Wil71a K.G. Wilson, Phys. Rev. B4 (1971) 3174

Wil71b K.G. Wilson, Phys. Rev. B4 (1971) 3184

Wil72 K.G. Wilson, Phys. Rev. Lett. 28 (1972) 548

WilB62 C. Williamson and J.B. Boujot, Tables of Range and Ratio of Energy Loss of Charged Particles of Energy 0.5 to 150 MeV, Rapport C.E.A. N^{O} 2189, Service de Physique Nucléaire à Basse Energie, 1962

WilF72 K.G. Wilson and M.E. Fisher, Phys.Rev. Lett. 28 (1972) 240

WojR68 P.J. Wojtowicz and M. Rayl, Phys. Rev. Lett. 20 (1968) 1489

Yam67 T. Yamazaki, Nuclear Data, Sec. A Vol. 3,1 (1967)

Zei71 W.D. Zeitz, Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, 1971

Diese Arbeit wurde im Bereich Kern- und Strahlenphysik des Hahn-Meitner-Institutes Berlin GmbH unter der Leitung von Prof. Dr. K.H. Lindenberger durchgeführt.

Für die Hilfe bei den Messungen und für zahlreiche Diskussionen danke ich den Herren Prof. Dr. J. Bleck, R. Butt, Prof. Dr. K.H. Lindenberger, Dr. R. Michaelsen und Dr. S.S. Rosenblum.

Danken möchte ich den Herren E. Baltrusch, T. Friese und Dr. S.S. Rosenblum für die Zusammenarbeit bei der Entwicklung und Konstruktion der Elektronenstrahlzeizung.

Lebenslauf

Am 13. Oktober 1944 wurde ich in Brandenburg als Kind des Joachim Zeitz und seiner Ehefrau Liselotte, geb. Schmidt, geboren. 1946 siedelten wir nach Höhndorf in Schleswig-Holstein über und zogen 1947 nach Hermannsburg in die Lüneburger Heide, wo ich ab 1951 die Volksschule besuchte. Meine Gymnasialzeit begann ich 1955 an der Holstenschule in Neumünster, wechselte dann 1957 auf die Christian-Schule nach Hermannsburg und kam im Dezember desselben Jahres auf das Max-Planck-Gymnasium in Gelsenkirchen-Buer. Dort bestand ich im Februar 1965 die Reifeprüfung. Vom Sommersemester 1965 an studierte ich an der Leopold-Franzens-Universität in Innsbruck. 1967 immatrikulierte ich mich an der Freien Universität Berlin und legte dort 1971 mit der Arbeit "Das magnetische Moment des ersten angeregten Zustandes von ^{62}Cu und das Hyperfeinfeld am Kupferkern im Nickelgitter" das Diplom in Physik ab. Anschließend begann ich am Bereich Kern- und Strahlenphysik des Hahn-Meitner-Instituts für Kernforschung bei Herrn Prof. Dr. K.H. Lindenberger meine Doktorarbeit.